

# Rastersondenmikroskopische Untersuchungen von Halbleiter-Heterostrukturen und Ferromagnet-Halbleiter-Hybridsystemen

## DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades  
doctor rerum naturalium  
(Dr. rer. nat.)  
im Fach Physik

eingereicht an der  
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I  
der Humboldt-Universität zu Berlin

von  
Herrn Dipl.-Phys. Tilo Plake  
geboren am 31. Januar 1972 in Berlin

Präsident der Humboldt-Universität zu Berlin:  
Prof. Dr. Jürgen Mlynek

Dekan der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I:  
Prof. Dr. Michael Linscheid

Gutachter:

1. Prof. Dr. Klaus Ploog
2. Prof. Dr. Ted Masselink
3. Prof. Dr. Karl-Heinz Rieder

eingereicht am: 25. Juni 2002  
Tag der mündlichen Prüfung: 5. November 2002

## Abstract

In this thesis, investigations on both epitactically grown GaAs/(Al,Ga)As semiconductor nanostructures using near-field scanning optical microscopy (SNOM) as well as ferromagnetic MnAs films on GaAs using scanning force microscopy are presented.

Setup, operation modes, and properties of a new SNOM designed for low-temperature experiments are discussed. In terms of resolution, both topographical sensitivity of the scanner and optical limits are distinguished. Surprisingly, the use of uncoated optical fibre tips enables sufficient optical resolution, while the transmission increases dramatically compared to conventional SNOM probes.

Using the SNOM setup, near-field optical experiments on GaAs quantum wells and GaAs quantum wires are made. The interface properties of the quantum well structures had been influenced during growth by interrupting the growth process. Thus, island-like areas with constant well thickness are prepared, whose lateral diameter is in the order of a few hundred nanometers. Near-field optical photoluminescence spectroscopy can detect the spatial distribution of the islands. The near-field optical images provide interesting insight into the interface morphology and hence about the growth process itself.

GaAs sidewall quantum wires had been grown such that they are built in the center of the intrinsic layer of a p-i-n LED structure. Applying the SNOM, spatially refined photocurrents are induced in the structure. The initial localisation of photogenerated charge carriers can also be chosen by varying the excitation energy. This enables a detailed study of how additionally generated carriers contribute to the photocurrent signal, the outcome of which provides deeper understanding in the process of a selective electroluminescence of the structure.

In the last part, structural investigations on MnAs film are discussed, which had been grown on GaAs(001) substrates. These films exhibit a phase coexistence of ferromagnetic and paramagnetic MnAs below the Curie temperature. As a result, periodic elastic domains of the coexisting phases are formed. The development of such domains is studied using temperature-dependent (magnetic) scanning force microscopy. The structural effects are discussed in connection with a theoretical model.

## Keywords:

near-field optical microscopy, quantum well thickness fluctuations, quantum wire LED structures, ferromagnetic MnAs on GaAs

## **Zusammenfassung**

Der erste Teil der Arbeit widmet sich dem Aufbau und der Wirkungsweise eines neuen SNOM für den Einsatz bei tiefen Temperaturen. Das Auflösungsvermögen des Mikroskops wird einmal in Hinblick auf die topographische Empfindlichkeit des Scanners in Richtung der Oberflächennormale, andererseits optisch-lateral charakterisiert. Es wird gezeigt, welche Möglichkeiten der Einsatz geätzter, unbedampfter Nahfeldsonden bietet.

Im zweiten Teil werden nahfeld-optische Untersuchungen an GaAs-Quantenfilmen und GaAs-Quantendrähten vorgestellt. Die Grenzflächeneigenschaften der Quantenfilmstrukturen wurden per Wachstumsunterbrechung dahingehend beeinflusst, dass inselartige Gebiete konstanter Quantenfilmdicke entstehen, deren lateraler Durchmesser einige hundert Nanometer beträgt. Durch Photolumineszenzspektroskopie im SNOM kann die räumliche Verteilung der Inseln detektiert werden. Die optischen Nahfeldbilder geben einen interessanten Einblick in die Grenzflächenmorphologie des Quantenfilms und ermöglichen so Rückschlüsse auf die Wachstumsprozesse.

Quantendrähte aus GaAs wurden in die intrinsische Zone einer p-i-n-Struktur eingebaut. Durch räumlich aufgelöste sowie energie-selektive Anregung von Photoströmen mittels SNOM kann das Verhalten von zusätzlich in der Struktur erzeugten Ladungsträgern auf den Gesamtstromfluss untersucht werden. Die Ergebnisse liefern ein verbessertes Verständnis über den Prozess der selektiven Elektrolumineszenz, durch den diese Strukturen gekennzeichnet sind.

Im letzten Teil werden strukturelle Untersuchungen an MnAs-Schichten vorgestellt, die auf GaAs(001) gewachsen wurden. Epitaktisch gewachsene MnAs-Schichten auf GaAs(001) zeigen eine Phasenkoexistenz von ferromagnetischem und paramagnetischem MnAs unterhalb der Curie-Temperatur. Auf Grund dieser Besonderheit kommt es zur Ausbildung von periodischen elastischen Domänen in der Schicht. Die Entwicklung solcher Domänen wird mittels temperaturabhängiger Rasterkraftmikroskopie direkt beobachtet. Die Untersuchungen werden ergänzt durch temperaturabhängige magnetische Rasterkraftmikroskopie.

### **Schlagwörter:**

optische Rasternahfeldmikroskopie, Quantenfilm-Dickenfluktuationen, Quantendraht-LED-Strukturen, ferromagnetisches MnAs/GaAs

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>5</b>
<b>2</b>	<b>Experimentelle Methoden</b>	<b>9</b>
2.1	Rastersondenmikroskopie . . . . .	9
2.1.1	Optische Nahfeldmikroskopie . . . . .	10
2.1.2	Magnetische Rasterkraftmikroskopie . . . . .	17
2.2	Ortsaufgelöste Lumineszenzspektroskopie . . . . .	19
<b>3</b>	<b>Optisches Tieftemperatur-Nahfeldmikroskop</b>	<b>22</b>
3.1	Aufbau . . . . .	22
3.2	SNOM-Spitzen . . . . .	27
3.2.1	Herstellung . . . . .	27
3.2.2	Auflösungsvermögen unbedampfter Spitzen . . . . .	30
3.3	Monolagenauflösung der Topographie . . . . .	32
<b>4</b>	<b>GaAs/(Al,Ga)As-Halbleiter-Heterostrukturen</b>	<b>36</b>
4.1	Grundlagen . . . . .	36
4.1.1	Niederdimensionale Halbleiterstrukturen . . . . .	36
4.1.2	Exzitonen . . . . .	39
4.1.3	Absorption und Rekombination . . . . .	40
4.1.4	Diffusion . . . . .	42
4.2	Quantenfilme . . . . .	43
4.2.1	Motivation . . . . .	43
4.2.2	Probenaufbau . . . . .	45
4.2.3	SNOM-Untersuchungen . . . . .	48
4.2.4	Diskussion der Grenzflächen . . . . .	54
4.3	Quantendrähte . . . . .	56
4.3.1	Quantendraht-LED-Strukturen . . . . .	56
4.3.2	Aufbau der Proben . . . . .	58
4.3.3	SNOM-Untersuchungen . . . . .	58
4.3.4	Diskussion . . . . .	65
4.4	Ergebnisse der Untersuchungen . . . . .	72
<b>5</b>	<b>MnAs/GaAs-Ferromagnet-Halbleiter-Hybridsysteme</b>	<b>75</b>
5.1	Einleitung . . . . .	75
5.2	Strukturelle Untersuchungen . . . . .	77

5.2.1	Kristallographische und epitaktische Eigenschaften . . . . .	77
5.2.2	Verspannungsinduzierte Phasenkoexistenz: Modell periodischer elastischer Domänen . . . . .	80
5.2.3	Direkter Nachweis der Phasenkoexistenz . . . . .	84
5.3	Mikromagnetik . . . . .	89
5.3.1	Magnetische Schichten: Grundlagen und Kenngrößen . . . . .	89
5.3.2	Magnetische Eigenschaften von MnAs-Schichten . . . . .	92
5.3.3	MFM-Untersuchungen . . . . .	94
5.4	Ergebnisse und weiterführende Ideen . . . . .	100
6	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>102</b>
	<b>Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>112</b>

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Idee eines Ultra-Mikroskops nach Synge . . . . .	11
2.2	Beugung einer elektromagnetischen Welle an einer kleinen Apertur . . . . .	13
2.3	Elektrisches Feld in der Ebene der Apertur nach Bouwkamp . . . . .	14
2.4	2-dimensionale Feldverteilung einer kegelförmigen Sonde . . . . .	15
2.5	SNOM-Konfigurationen . . . . .	16
2.6	Prinzip der magnetischen Rasterkraftmikroskopie . . . . .	18
3.1	Optisches Tieftemperatur-Nahfeldmikroskop (SNOM) . . . . .	23
3.2	Schematische Darstellung des SNOM . . . . .	25
3.3	Schwingquarz zur Abstandsdetektion . . . . .	25
3.4	Elektronisches Schaltbild . . . . .	27
3.5	Tube-etching-Verfahren nach Stoeckle . . . . .	28
3.6	Anordnung zum Ätzen von Glasfaserspitzen. . . . .	29
3.7	Geätzte Glasfaserspitzen . . . . .	30
3.8	Auflösungsvermögen einer unbedampften Nahfeldsonde . . . . .	31
3.9	Topographie einer GaN-Schicht . . . . .	33
3.10	Topographie einer GaAs-Schicht . . . . .	34
4.1	Bindungsenergie eines 2d-Exzitons . . . . .	41
4.2	Aufbau der Quantenfilmproben . . . . .	46
4.3	PL-Übersichtsspektren . . . . .	46
4.4	Numerische Berechnung der Energiezustände . . . . .	48
4.5	Nahfeld-PL-Spektrum . . . . .	49
4.6	Nahfeld-PL-Aufnahmen . . . . .	51
4.7	Simulation der räumlichen PL-Verteilung . . . . .	52
4.8	Weitere Monolagenaufspaltungen . . . . .	53
4.9	Idealisierte Grenzflächenverhältnisse . . . . .	54
4.10	Reale Grenzflächenverhältnisse . . . . .	55
4.11	TEM-Aufnahme eines Sidewall-Quantendrahtes . . . . .	57
4.12	Elektrolumineszenz einer Quantendraht-LED-Struktur . . . . .	57
4.13	Aufbau der Quantendraht-LED-Struktur . . . . .	59
4.14	Prinzip der Photostromanregung an der Spaltkante . . . . .	60
4.15	Photostromsignal bei Anregung an Spaltfläche . . . . .	61
4.16	Linienescans . . . . .	62
4.17	Prinzip der Photostromanregung durch die Probenoberfläche . . . . .	63
4.18	Räumliche Verteilung der Photostromanregung . . . . .	64

4.19	Linien-scans . . . . .	65
4.20	Photostromsignal bei Anregung zwischen QW- und QWR-Energie . . . . .	65
4.21	Zur Diskussion der Anregung in der Spaltflächenebene . . . . .	66
4.22	EBIC- und CL-Signal einer Quantendraht-LED-Probe . . . . .	68
4.23	Einfluss des elektrischen Feldes auf die Wellenfunktionen . . . . .	69
4.24	Wellenfunktionenüberlapp in Abhängigkeit von der elektrischen Feldstärke . . . . .	70
4.25	CL-Untersuchungen an Sidewall-Quantendrähten . . . . .	72
5.1	Epitaktische Orientierung von MnAs auf GaAs(001) . . . . .	78
5.2	TEM-Aufnahme einer MnAs/GaAs(001)-Grenzfläche . . . . .	79
5.3	Röntgenbeugungsbild und AFM-Aufnahme . . . . .	79
5.4	Zur Anordnung der periodischen elastischen Domänen . . . . .	81
5.5	Lösung des elastischen Problems . . . . .	82
5.6	Theoretische Berechnung der Röntgenbeugungspeaks . . . . .	83
5.7	Temperaturabhängige Oberflächentopographie einer MnAs-Schicht . . . . .	85
5.8	Phasenanteil als Funktion der Temperatur . . . . .	87
5.9	Vergleich des Oberflächenprofils . . . . .	88
5.10	Domänenperiode in Abhängigkeit vom Phasenanteil . . . . .	88
5.11	AFM/MFM-Aufnahmen einer unmagnetisierten MnAs-Schicht . . . . .	95
5.12	MFM-Aufnahmen einer MnAs mit schrittweise erhöhter Aufmagnetisierung . . . . .	96
5.13	Zeitliche Stabilität der Domänenstruktur . . . . .	97
5.14	Temperaturabhängige MFM-Aufnahmen . . . . .	99
5.15	Ausblick . . . . .	101

# Kapitel 1

## Einleitung

Die wissenschaftliche Entwicklung der Nanotechnologien mit dem Ziel der Herstellung und Anwendung atomar dimensionierter Bauelemente bildet ein großes Potenzial nicht nur in der chemischen und biologisch-medizinischen, sondern auch in der physikalischen Forschung. Strukturen mit Abmessungen im Nanometerbereich besitzen Eigenschaften, die den quantenmechanischen Gesetzmäßigkeiten unterliegen. Der Übergang von klassischem zu einem ausgeprägt quantenmechanischen Verhalten bildet den Ansatzpunkt für technologische Innovation. Als Grundlagenwissenschaft liefert die Physik das theoretische und experimentelle Fundament nanotechnologischer Konzepte. Zu den rein physikalischen Forschungsschwerpunkten zählen die Bereiche Nanomechanik, Nanooptik und Nanoelektronik.

Grundlage der Nanoelektronik sind Halbleiterheterostrukturen, deren elektronische Eigenschaften durch eine Dimensionsreduzierung des Ladungsträgersystems geprägt sind. Die Herstellung derartiger Nanostrukturen erfolgt mittels epitaktischer Verfahren, bei denen einkristalline Schichten aus Halbleitermaterialien verschiedener Bandlücke mit hoher Präzision der Schichtdicke auf einem Substrat abgeschieden werden. Durch geeignete Wahl der Materialien sowie ggf. der Topographie der Substratoberfläche lassen sich Einschlusspotenziale für Ladungsträger in allen drei Dimensionen realisieren. Voraussetzung für eine Quantisierung durch Dimensionsreduzierung ist, dass die räumliche Ausdehnung des Einschlussgebiets der Struktur in der Größenordnung der de-Broglie-Wellenlänge der Ladungsträger liegt. Auf diese Weise entstehen zwei-, ein- oder null-dimensionale Ladungsträgersysteme in Quantenfilmen, -drähten oder -punkten. Eine Erweiterung des Themenkreises erfährt die Halbleiterelektronik gegenwärtig durch die Zusammenführung von Ladungsträgertransport und kontrollierter Spinpolarisation [1]. Die frei beweglichen Elektronen tragen die zusätzliche Information der Spinquantenzahl mit sich. Diese Information ist in heutigen elektronischen Bauelementen im Prinzip ungenutzt geblieben. Der Erfolg spinabhängiger Elektronik hängt von der Möglichkeit der Injektion, des Transports und der Detektion spinpolarisierter Ladungsträger in Halbleitern ab. Im derzeitigen anfänglichen Stadium der Entwicklung besteht das Ziel darin, geeignete Materialkombinationen zur Integration von ferromagnetischen Materialien mit Halbleitern zu finden, die sich mit epitaktischen Verfahren realisieren lassen.



Um Nanostrukturen untersuchen bzw. manipulieren zu können, sind geeignete Methoden notwendig. Eine Schlüsselfunktion nehmen hierbei die Rastersondenverfahren ein, die auf dem Prinzip des Ab tastens von Oberflächen mit einer feinen Spitze beruhen. In der zwanzigjährigen Entwicklung seit der Erfindung des Rastertunnelmikroskops [2] wurden zahlreiche Varianten von Rastersondenmikroskopen realisiert, die auf unterschiedlichen Wechselwirkungsmechanismen zwischen Sonde und Probe basieren. Eine wichtige Methode arbeitet auf der Grundlage von abstandsabhängigen Kraftwechselwirkungen [3] und definiert damit die Klasse der Rasterkraftmikroskope. In Verbindung mit der Abstandsdetektion in einem Rastersondenmikroskop ist es möglich, optische Nahfeldelemente in die unmittelbare Nähe der Probenoberfläche zu führen [4]. Im Zusammenspiel mit dem Rasterverfahren ist somit eine Möglichkeit gegeben, Nanostrukturen, deren laterale Abmessungen unterhalb der durch Beugung begrenzten Auflösung klassischer Lichtmikroskope liegen, optisch abzubilden oder zu beeinflussen. Diese optischen Rasternahfeldmikroskope stellen eine Erweiterung der Familie der Rastersondenverfahren dar.

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit dem Zusammenwirken struktureller, elektronischer und magnetischer Eigenschaften in epitaktischen Schichtsystemen. Bezüglich der Struktur werden beabsichtigte und unbeabsichtigte Einflüsse unterschieden. Die thematische Gliederung der Arbeit besteht aus einem methodischen und drei experimentellen Schwerpunkten.

Die Untersuchungen wurden hauptsächlich mit einem neuartigen optischen Rasternahfeldmikroskop für den Einsatz bei tiefen Temperaturen durchgeführt, dessen Aufbau und Wirkungsweise in dieser Arbeit dokumentiert ist. In diesem Rastersondenmikroskop sind zwei Arbeitsmodi vereint, nämlich die Abtastung der Oberfläche als Rasterkraftmikroskop und die optische Spektroskopie hoher Ortsauflösung. Durch diesen Vorteil kann das optische Rasternahfeldmikroskop die herkömmlichen Methoden orts aufgelöster Lumineszenzspektroskopie (Kathodolumineszenz,  $\mu$ -Photolumineszenz) ideal ergänzen.

Mit dem Materialsystem GaAs/(Al,Ga)As werden standardmäßig niederdimensionale Ladungsträgersysteme erzeugt. Die Grenzflächeneigenschaften in GaAs-Quantenfilmen hängen von den Bedingungen des epitaktischen Wachstums ab [5]. Durch gezielte Beeinflussung dieser Bedingungen kann ein zweidimensionales Inselwachstum des GaAs erreicht werden. Im Idealfall weist die Dicke des Quantenfilms eine Fluktuation von einer Monolage pro Grenzfläche auf. Ist der Radius der Inseln konstanter Dicke größer als der Exzitonenradius, kommt es zu einer qualitativen Veränderung des Photolumineszenzspektrums des Quantenfilms. Das optische Rasternahfeldmikroskop kann die laterale Verteilung der Inseln über die Photolumineszenz abbilden. Dadurch können Aussagen über die Grenzflächenbeschaffenheit abgeleitet und Rückschlüsse auf den Wachstumsprozess selbst gezogen werden.

Eine Methode zur Herstellung von Quantendrähten ist das epitaktische Überwachsen von in das Substrat eingetätzten, streifenförmigen Mesen mit einem Quantenfilm [6]. Wird der Quantendraht in eine Leuchtdiodenstruktur integriert,

kann eine um Größenordnungen stärkere Elektrolumineszenz des Quantendrahtes im Vergleich zum umgebenden Quantenfilm beobachtet werden [7]. Der Effekt lässt Besonderheiten des Ladungsträgertransports in der Struktur vermuten. Um die Transporteigenschaften zu studieren, wurden bislang mittels Elektronenstrahl injizierte, lokale Testströme verwendet [8]. Im Rahmen dieser Arbeit wird ein alternativer Weg eingeschlagen, indem mit Hilfe des optischen Rasternahfeldmikroskops ein Photostrom orts aufgelöst angeregt wird. Die Verwendung variabler Anregungsenergien gestattet dabei eine räumlich selektive Ladungsträgererzeugung im Quantenfilm bzw. Quantendraht.

Ferromagnet-Halbleiter-Hybridstrukturen aus MnAs/GaAs besitzen Eigenschaften, die für zukünftige spinelektronische Anwendungen von Bedeutung sein könnten. Epitaktische MnAs-Schichten auf GaAs(001) weisen bei Raumtemperatur interessante strukturelle Merkmale auf, die das Resultat einer durch die laterale Verspannung der Schicht bedingten Phasenkoexistenz von ferromagnetischem  $\alpha$ -MnAs und paramagnetischem  $\beta$ -MnAs sind. In der vorliegenden Arbeit wird mit Hilfe temperaturabhängiger Rasterkraftmikroskopie die räumliche Anordnung der Phasen in der Schicht erstmals direkt beobachtet. Durch diese Messungen lässt sich die Entwicklung des Phasenübergangs nachvollziehen. Desweiteren werden Untersuchungen mittels temperaturabhängiger magnetischer Rasterkraftmikroskopie vorgestellt, die einen Einblick in die mikromagnetische Struktur innerhalb der ferromagnetischen elastischen Domänen geben.



# Kapitel 2

## Experimentelle Methoden

### 2.1 Rastersondenmikroskopie

Mit der Erfindung des Rastertunnelmikroskops (engl. *scanning tunneling microscope*, STM) durch Binnig und Rohrer [2] im Jahre 1982 begann eine neue Ära der Oberflächenphysik. Das STM gestattete erstmals Einblicke in die Oberflächenstruktur von Metallen und Halbleitern auf atomarer Skala. Die Idee: ein Keramikröhrchen kann sich unter hohen Spannungen aufgrund der Elektrostriktion ausdehnen bzw. verbiegen und somit die Position einer feinen Wolframspitze in der Nähe der Probenoberfläche hochgenau steuern. Wenn der Abstand zwischen Spitze und Probe von der Größenordnung einiger Ångström ist, kann bei Anlegen einer Spannung zwischen Spitze und Probe ein Tunnelstrom fließen. Eine seitliche Bewegung der Spitze bildet über den sich ändernden Tunnelstrom die Zustandsdichte und damit im Prinzip die Korrugation der Oberfläche ab. Um eine Auflösung im Sub-Ångström-Bereich zu erhalten, darf das Ende der Spitze selbst nur aus einem einzigen Atom bestehen.

In der Folgezeit ist eine Vielzahl von Abwandlungen des STM entstanden, wobei verschiedene Wechselwirkungsmechanismen zwischen einer speziellen Sonde und der Oberfläche einer Probe ausgenutzt werden. Allgemein lassen sich die verschiedenen Gattungen in der Familie der Rastersondenmikroskope (engl. *scanning probe microscopes*, SPM)<sup>1</sup> zusammenfassen. Während die Technik des STM auf Transportprozessen (Tunnelstrom) aufbaut, beruht die Gattung der Rasterkraftmikroskope (engl. *scanning force microscopes*, SFM) auf der Wirkung kleinster Kräfte (bis zu  $1 \times 10^{-18}$  N [3]) zwischen einer geeigneten Sonde und der Probe. Typisch sind van-der-Waals-, magnetische und elektrostatische, Reibungs- und Adhäsions-(= Kapillar)kräfte. Nach den Kräften werden die verschiedenen Arten der SFM eingeteilt. Das magnetische Rasterkraftmikroskop (engl. *magnetic force microscope*, MFM) kann die Domänenstruktur an der Oberfläche eines magnetischen Materials abbilden. Auf die Grundlagen eines MFM wird im Unterabschnitt 2.1.2 eingegangen.

Die Möglichkeit der Abstandsregelung über einen Tunnelstrom oder eine Kraft-

---

<sup>1</sup>Oft findet man auch die Bezeichnung SXM. X bezeichnet hierbei die Art der Wechselwirkung zwischen Sonde und Probe.

wirkung kann u. a. dazu ausgenutzt werden, eine optische Nahfeldsonde wenige Nanometer über der Oberfläche einer Probe zu positionieren. Eine optische Nahfeldsonde stellt im Prinzip einen Metallschirm mit einer sub- $\lambda$ -großen Öffnung (Apertur) dar, der die Probe vor Beleuchtung eines Lichtwellenfeldes (Fernfeld) abschirmt. Nach den Prinzipien der klassischen Optik ist eine Wellenausbreitung durch die Öffnung hindurch nicht möglich. Hinter der Apertur kann aber ein evaneszentes, d. h. exponentiell abklingendes Wellenfeld, beobachtet werden, das bei hinreichend geringem Abstand in die Probe einkoppeln kann. Das Auflösungslimit  $d_{\min} \approx \lambda/2$  der klassischen Optik, das durch Beugungserscheinungen hervorgerufen wird, kann somit umgangen werden. Die Auflösung wird vielmehr durch den Durchmesser der Apertur bestimmt. Derartige Mikroskope sind als optische Rasternahfeldmikroskope (engl. *scanning near-field optical microscope*, SNOM)<sup>2</sup> bekannt. Im folgenden Unterabschnitt soll ein Überblick über die historische Entwicklung und die theoretischen Grundlagen optischer Nahfeldmikroskopie gegeben werden.

### 2.1.1 Optische Nahfeldmikroskopie

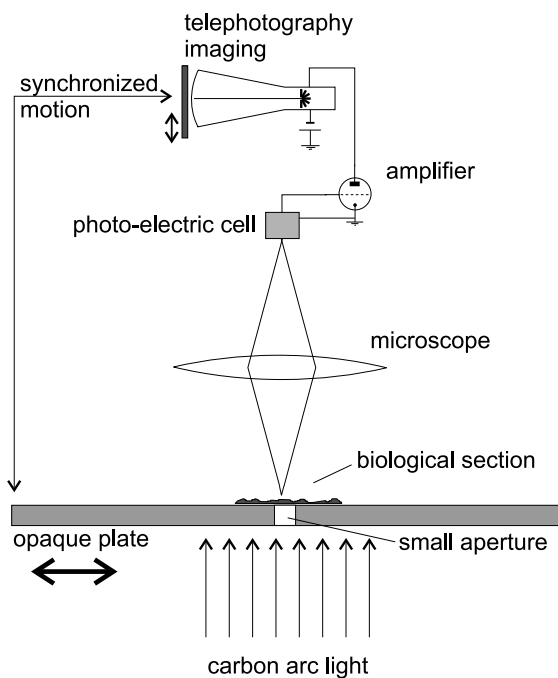
#### Historischer Abriss

Wenngleich die Konstruktion optischer Nahfeldmikroskope mit Wellenlängen im sichtbaren Bereich des elektromagnetischen Spektrums ein Kapitel der jüngeren Vergangenheit ist, wurde die Idee bereits 1928 von Edward Hutchinson Synge formuliert [9, 10]. Diese Arbeiten stellen mehr als nur eine Idee dar — sie beinhalten bereits sehr detaillierte Vorstellungen über die Realisierung solch optischer Ultra-Mikroskopie mit einem Auflösungsvermögen jenseits der Beugungsgrenze klassischer Lichtmikroskope.

Das Konzept von Synge ist in Abb. 2.1 auf der Grundlage von [9] skizziert. Eine lichtundurchlässige Platte, in welche eine kleine Apertur von ungefähr 10 nm Durchmesser eingebracht ist, wird unmittelbar unterhalb einer flachen biologischen Probe angebracht und von unten her mit einer intensitätsstarken Lichtquelle bestrahlt. Der sich hinter der Apertur weiter fortpflanzende (geringe) Teil des Lichtes durchquert die Probe und wird mit einem Mikroskopobjektiv auf einen Photodetektor fokussiert. Wenn die Platte unter der Probe schrittweise in Inkrementen entsprechend der Aperturgröße bewegt wird, kann eine Veränderlichkeit des Lichtstromes gemessen werden. Das Signal des Photodetektors steuert die Intensität einer zweiten Lichtquelle, deren Strahl eine Photoplatte belichtet. Werden beide Platten synchron bewegt, so ließe sich damit ein Ausschnitt der Probe mit einer Auflösung von ca. 10 nm abbilden.

Die größten technischen Schwierigkeiten sah Synge in der Bereitstellung einer Lichtquelle starker Intensität, der Bewegung der Platte mit einer Schrittweite von wenigen Nanometern, der Ebenheit der biologischen Proben und letztlich der Konstruktion einer wenige Nanometer großen Apertur. Die Lösungen der technischen Probleme gab Synge wie folgt an. Er schlug zwar den Einsatz einfacher

<sup>2</sup>Besonders in der amerikanischen Literatur findet man die Bezeichnung NSOM = *near-field scanning optical microscope*, die den Nahfeldeffekt hervorhebt.



**Abbildung 2.1:** Illustration der Idee eines Ultra-Mikroskops nach E. H. Synge (1928).

Kohlebogenlampen zur Illumination vor, gab aber zu bedenken, dass höhere Intensitäten erforderlich sein könnten. Für die schrittweise Bewegung der Platten gab Synge einen Schraubenmechanismus an. Die Proben sollten mit einer speziellen Schleifplatte aus Korund-Körnern von ca.  $5\ \mu\text{m}$  Durchmesser eben geschliffen werden. Für die Aperturen fand er chemisch auf Glas abgeschiedene Silberfilme geeignet, in welchen sich wegen der Anwesenheit von Kolloiden auf der Glasoberfläche ‚natürliche‘ Löcher ausbilden. Die praktische Umsetzung dieses Konzepts sollte aber erst am Ende des 20. Jahrhunderts in den mannigfaltigen Entwicklungen der optischen Rasternahfeldmikroskope erfolgen. Vorerst gerieten Synges Ideen in Vergessenheit, nicht zuletzt wegen der damals großen technischen Herausforderung, die an die Konstruktion eines derartigen Mikroskops geknüpft waren.

Seit den 40er Jahren des 20. Jahrhunderts wuchs das Interesse an der Mikrowellentechnik, insbesondere das Verhalten von Mikrowellenresonatoren, die über eine kleine Öffnung miteinander gekoppelt sind [11]. In den folgenden Jahrzehnten erschienen vorrangig theoretische Arbeiten zum Problem der Beugung elektromagnetischer (aber auch akustischer) Wellen an einer sub- $\lambda$ -großen Öffnung. Im Jahre 1972 veröffentlichten Ash und Nichols ihre Arbeiten zu einem Mikrowellen-Nahfeldmikroskop [12]. Sie demonstrierten erstmals eine Abbildung mit Sub-Wellenlängen-Auflösung ( $\lambda/60$ ), indem sie mit 3-cm-Mikrowellenstrahlung Linienscans über verschiedene Metallgitter (minimal 0,5 mm) führten. Rund 10 Jahre später gab die Technologie des STM neue Impulse für die Entwicklung optischer Nahfeldmikroskopie. Nach dem STM interessierte man sich für weitere Arten von Rastersonden, die mit anderen Wechselwirkungsmechanismen arbei-

ten. 1982 konnten Pohl und Denk erstmals die Wirkungsweise eines optischen Nahfeldmikroskops zeigen [4, 13]. Wesentliche Arbeiten zur weiteren Verbesserung der Technik, vor allem der Verwendung von Mikropipetten als Vorläufer heutiger Nahfeldsonden, wurden an der Cornell-Universität von Betzig *et al.* geleistet [14].

### Theoretische Grundlagen

Paesler und Moyer geben in [15] eine allgemeine, praxisbezogene Definition für den Begriff «Nahfeldoptik» an:

Nahfeldoptik ist ein [spezieller] Zweig der Optik, der auf [instrumentellen] Konfigurationen beruht, die eine Übertragung des Lichtes zu, von oder bei einem bzw. durch ein Element mit Sub-Wellenlängenmerkmalen und dessen Kopplung in ein zweites, in Sub-Wellenlängenentfernung befindliches, Element zulassen.

Ein geometrisch einfaches, optisches Element mit Sub- $\lambda$ -Eigenschaften stellt eine kreisrunde Öffnung (Apertur) mit dem Radius  $r \ll \lambda_0$  in einem dünnen, leitenden Schirm dar. Entsprechend dem in Abb. 2.2 gezeigten Schema mit der Öffnung in der  $y$ - $z$ -Ebene wird eine elektromagnetische Welle hinter dem Schirm, d. h. in  $x$ -Richtung, nicht propagieren. Stattdessen findet man ein evaneszentes Wellenfeld, dessen Intensität mit wachsender Entfernung  $x$  exponentiell abnimmt. Zur Verdeutlichung wird eine ebene Welle

$$E = E_0 \exp[i(\vec{k}_0 \cdot \vec{r} - \omega t)] \quad (2.1)$$

angenommen, die sich von links auf den Schirm zubewegt (vgl. Abb. 2.2). Der Betrag des Wellenzahlvektors  $k_0 = 2\pi/\lambda_0$  setzt sich zusammen aus einem Anteil in der  $y$ - bzw.  $z$ -Richtung ( $\vec{k}_\parallel$ ) und einem Anteil in  $x$ -Richtung ( $\vec{k}_\perp$ ):

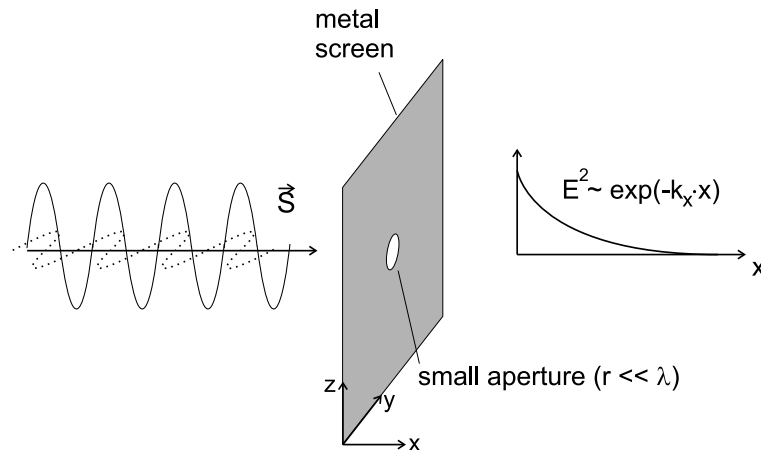
$$\vec{k}_0 = \vec{k}_\parallel + \vec{k}_\perp \implies k_0^2 = k_\parallel^2 + k_\perp^2 \stackrel{!}{=} \text{konstant.} \quad (2.2)$$

Die Apertur läßt aber wegen  $r \ll \lambda_0$  nur eine Wellenausbreitung für große Werte  $k_\parallel^2 \geq (2\pi/r)^2$  zu. Unter der Annahme eines unendlich dünnen Schirmes gilt Gl. 2.2 auch in der Ebene der Öffnung. Da innerhalb der Öffnung  $k_\parallel^2 \gg k_0^2$  ist, wird die senkrechte Komponente imaginär:  $k_\perp \longrightarrow i|k_\perp|$ . Für die Welle auf der rechten Seite des Schirmes bedeutet dies:

$$E \sim E_0 \exp(-|k_\perp|x). \quad (2.3)$$

Hinter der Öffnung existiert ein evaneszentes Wellenfeld, dessen Intensität exponentiell abklingt, und zwar um so stärker, je kleiner die Öffnung ist. Befindet sich hinter der Öffnung in unmittelbarer Nähe (Sub- $\lambda$ -Abstand) ein geeignetes Medium, in das die evaneszente Welle einkoppeln kann, ist eine weitere Propagation möglich — nunmehr mit deutlich abgeschwächter Intensität gegenüber der linksseitigen, einlaufenden Welle. Im Teilchenbild kann in Analogie zum Tunneln von Elektronen im STM von einem Photonentunneln gesprochen werden.



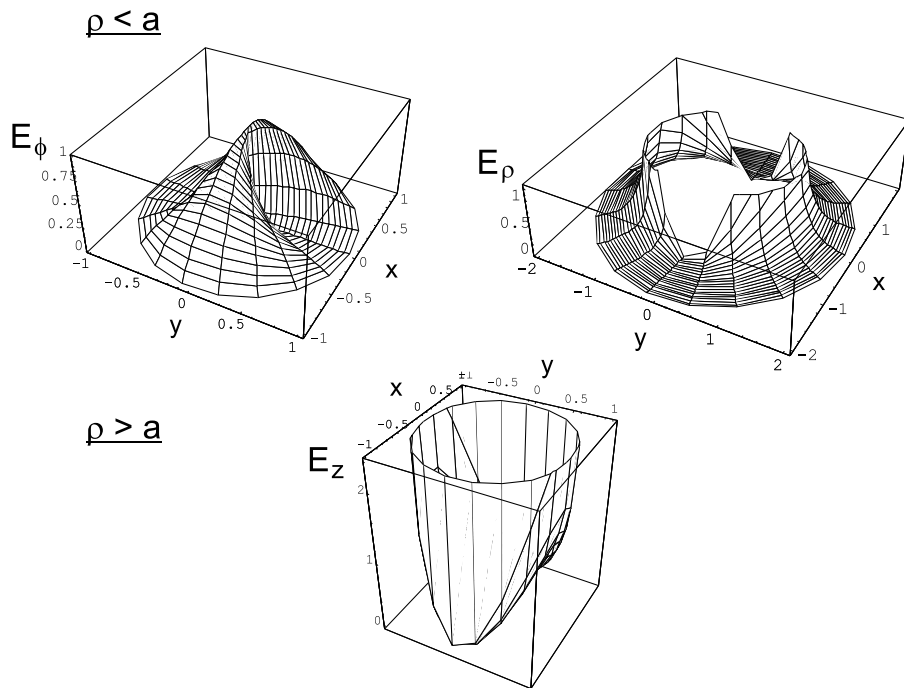


**Abbildung 2.2:** Entstehung eines evaneszenten Wellenfeldes durch Beugung einer elektromagnetischen Welle an einer kleinen Apertur.

In Verallgemeinerung der o. g. Ausführungen können jegliche Objekte, deren Abmaße kleiner sind als die Wellenlänge des zur Mikroskopie verwendeten Lichtes, als Träger hoher lateraler Raumfrequenzen betrachtet werden. Im Wellenfeld des mit  $\vec{k}_0$  eingestrahnten Lichtes emittieren diese Objekte Licht mit hohen  $k_{\parallel}^2$ -Anteilen, das aber innerhalb einer Entfernung von  $x_0 = \lambda_{\perp}/2\pi$  ( $k_{\perp}x = 1$ ) auf  $1/e$  abfällt. Die Distanz  $x_0$  definiert demnach den Bereich des Nahfeldes eines Objekts. Eine im Nahfeld positionierte geeignete Sonde (zweites Element mit sub- $\lambda$ -großen Abmaßen) kann die Anteile hoher Raumfrequenz aufsammeln und zur Detektion weiterleiten.

Die konkrete Berechnung der evaneszenten Wellenfelder stellt eine große Herausforderung dar, insbesondere, da die Form der Sonde und der Probe berücksichtigt werden muss. In einfachster Geometrie befindet sich eine kreisrunde Apertur in einem unendlich ausgedehnten, infinitesimal dünnen, flachen Metallschirm. Hierzu wurden von Rayleigh [16] sowie Sommerfeld [17] erste Rechnungen durchgeführt. In den 1940er Jahren beschäftigte sich Bethe mit dem Problem der Kopplung zweier Mikrowellenkavitäten über eine kleine Öffnung [11]. Er zeigte, dass die klassische Beugungstheorie für den Fall kleiner Aperturen versagt, wenn der Radius der Apertur kleiner als die Wellenlänge der Strahlung ist. Letzteres hat zur Folge, dass die Feldgrößen  $E_0$  und  $H_0$  im Gebiet der Öffnung (nahezu) konstant sind. Bethe behandelt die Beugung elektromagnetischer Wellen an einer kleinen Öffnung in einem flachen, unendlich ausgedehnten und perfekt leitenden Schirm durch Lösung der Maxwellschen Gleichungen unter Berücksichtigung der Randbedingungen (d. h. Verschwinden der Komponente  $E_{0\parallel}$  und der Normalkomponente  $H_{0\perp}$  in der Schirmebene) durch ein Verfahren, das die Feldstärken hinter dem Schirm unter Annahme virtueller magnetischer Momente in der Ebene der Öffnung und elektrischer Momente senkrecht dazu berechnet. Ein wesentliches Resultat der Rechnungen ist die Angabe der Inten-





**Abbildung 2.3:** Graphische Darstellung der Komponenten des elektrischen Feldes in der Ebene der Öffnung nach Gl. 2.5.

sität der Strahlung hinter der Öffnung nach

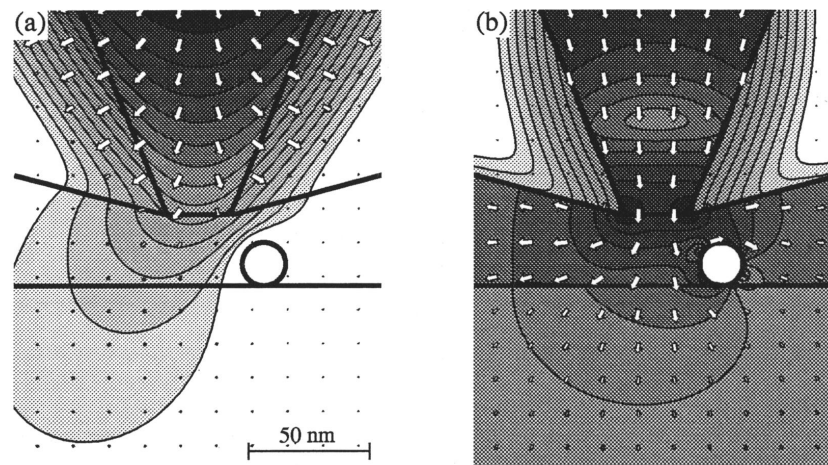
$$S_{\text{tot}} = \frac{c}{27\pi^2} k_0^2 a^6 (4H_0^2 + E_0^2), \quad (2.4)$$

die demnach proportional zur sechsten Potenz des Lochradius  $a$  ist. Bethes Berechnungen liefern nur bedingt korrekte Feldverteilungen, wie durch Bouwkamp gezeigt wurde [18]. Vor allem im Nahfeld bedurfte es einer Verbesserung. Als Ergebnis seiner Rechnungen erhält Bouwkamp z. B. für die Verteilung der elektrischen Feldstärke in der Ebene der Öffnung in Zylinderkoordinaten ( $E_\rho, E_\phi, E_z$ ) und unter Annahme einer in  $x$ -Richtung linear polarisierten einfallenden Welle ( $\phi = 0$ ):

$$\left. \begin{aligned} E_\rho &= -\frac{8ik}{3\pi} \frac{a^2 - \rho^2/2}{\sqrt{a^2 - \rho^2}} \cos \phi \\ E_\phi &= \frac{8ik}{3\pi} \sqrt{a^2 - \rho^2} \sin \phi \\ E_z &= 0 \end{aligned} \right\} \forall \rho < a \quad \left. \begin{aligned} E_\rho &= 0 \\ E_\phi &= 0 \\ E_z &= \frac{4ika^3 \cos \phi}{3\pi\rho\sqrt{\rho^2 - a^2}} \end{aligned} \right\} \forall \rho > a \quad (2.5)$$

Zur Verdeutlichung sind die Komponenten des elektrischen Feldes in Abb. 2.3 graphisch dargestellt. Die Komponenten  $E_\rho$  und  $E_z$  werden für  $r \rightarrow a$  singularär. Andere Rechnungen (z. B. Grober *et al.* in [20]) bestätigen dieses Verhalten.

In der Praxis werden metallische Schirme (z. B. Al) verwendet, die einerseits keine ideal leitenden Schirme darstellen und andererseits an die Geometrie von Rastersonden angepasst sind. Eine analytische Behandlung des Beugungsproblems

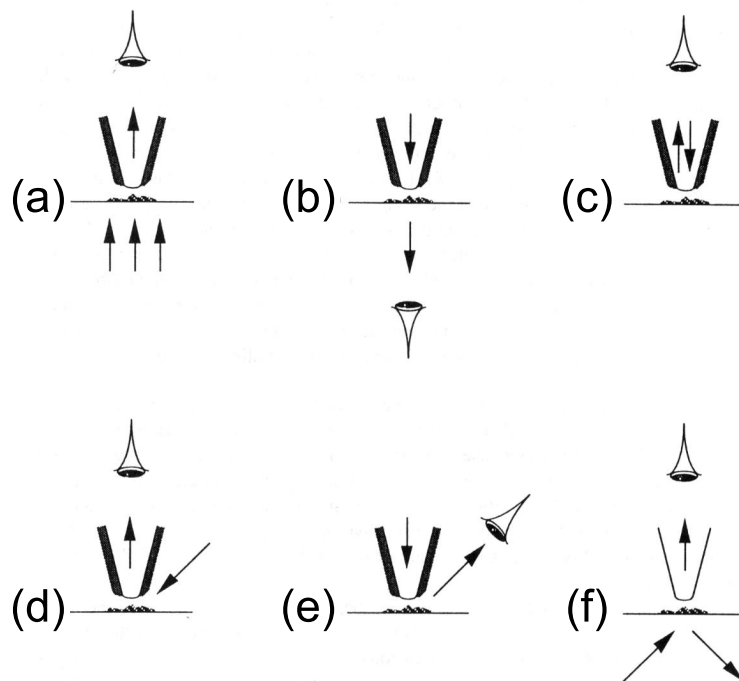


**Abbildung 2.4:** Feldverteilung einer zweidimensionalen, kegelförmigen Nahfeldsonde in (a) *s*-Polarisation und (b) *p*-Polarisation in Anwesenheit eines perfekt leitenden Objekts ( $\epsilon = -\infty$ ) auf der Probenoberfläche. Die Berechnungen wurden von Novotny *et al.* auf Grundlage einer *multiple-multipole*-Methode erstellt [19].

wird dadurch erheblich erschwert. Die Berechnung der Feldverteilungen kann daher besser unter Zuhilfenahme numerischer Methoden durchgeführt werden. Nowotny *et al.* [19] haben unter Verwendung einer *multiple-multipole*-Methode den Fall einer zweidimensionalen Sonde mit konischer Geometrie und endlicher Dicke des Metallschirms simuliert. Abbildung 2.4 gibt eine weitere Simulation wieder, in der der Einfluss eines auf der Oberfläche der Probe befindlichen, ideal leitenden Gebildes auf die Feldverteilung demonstriert wird. Dabei wird in *s*-Polarisation (Vektor der elektrischen Feldstärke senkrecht zur Bildebene) und *p*-Polarisation unterschieden.

### Experimentelle Konfigurationen

In der Praxis erweisen sich konisch auslaufende Metallschirme mit einer Apertur in der Kegelspitze als äußerst vorteilhaft, da sie mit der Geometrie typischer Rastersonden kompatibel sind. Dadurch ist z. B. neben der Aufnahme rasteroptischer Bilder eine Erfassung der Oberflächentopographie über die Kraftwirkung zwischen Sonde und Probe möglich. Insbesondere ist die Möglichkeit des Nachführens der Sonde bei unebenen Proben wichtig, um den Sub- $\lambda$ -Abstand im gesamten Scanbereich zu gewährleisten. Als Sonden haben sich Glasfasern bewährt, die an einem Ende spitz zulaufen und dort mit einer Metallschicht (Al, Cr) bedampft sind. Die Faser leitet somit das Licht direkt in den Bereich der Apertur, so dass keine aufwändigen optischen Hilfsmittel nötig sind. Daneben gibt es Sonden, die aus einer hohlen Pyramide aus Cr mit geöffneter Spitze bestehen [21]. Diese Pyramiden werden in mehreren Verfahrensschritten in einen Si-Cantilever geätzt. Dies eröffnet die Möglichkeit der Kombination von optischer Nahfeldmikroskopie mit einem AFM (siehe Abschn. 2.1.2). Zur Erzeugung des erforderlichen monochromatischen Lichtes steht eine ganze Bandbreite von Lasern zur



**Abbildung 2.5:** Konfigurationen im SNOM: (a) Kollektions- und (b) Illuminationsmodus in Transmissionsgeometrie, (c) Illuminations-/Kollektionsmodus, (d) Kollektions- und (e) Illuminationsmodus unter Reflexionsgeometrie, (f) frustrierte Totalreflexion (PTM). Nach Paesler und Moyer [15]

Verfügung, die den Spektralbereich vom UV bis in den nahen Infrarotbereich abdecken. In der Regel werden im SNOM monomodige Glasfasern eingesetzt. Daher muss die zulässige Wellenlänge der Faser an die vorgesehene Wellenlänge des Laserlichtes angepasst sein.

Abbildung 2.5 gibt einen Überblick die möglichen SNOM-Konfigurationen. Grundsätzlich wird in Reflexions- oder Transmissionsgeometrie unterschieden. Nach Abb. 2.5 gibt es

- (a) Kollektionsmodus in Transmissionsgeometrie: Die Probe wird durchleuchtet, und das optische Signal im Nahfeld wird über die Sonde aufgesammelt und zur Bildgebung weiterverarbeitet.
- (b) Illuminationsmodus in Transmissionsgeometrie: Sie stellt den umgekehrten Prozess zu (a) dar.
- (c) Illuminations-/Kollektionsmodus: Die Sonde dient gleichermaßen als Lichtquelle wie als Sammelement. Der Modus ist besonders für spektroskopische Zwecke an Halbleitern geeignet, wenn die Diffusion von Ladungsträgern die Ortsauflösung des SNOM beeinflusst.
- (d) Kollektionsmodus in Reflexionsgeometrie: Wird bei undurchsichtigen Proben angewandt. Abschattungseffekte können den Signalweg beeinflussen.

- (e) Illuminationsmodus in Reflexionsgeometrie: Umkehrung von (d).
- (f) Frustrierte Totalreflexion: Eine unbedampfte Glasfaser Spitze fördert die Propagation des evaneszenten Wellenfeldes, das bei schräger Durchleuchtung der Probe von unten unter Totalreflexion an der Probenoberfläche auftritt. Wird auch als Photonentunnelmikroskop (PTM) bezeichnet.

In der vorliegenden Arbeit wird ein SNOM in Reflexionsgeometrie vorgestellt, das in den Modi (c), (d) und (e) arbeiten kann. Eine nähere Beschreibung des Aufbaus wird in Kap. 3 gegeben.

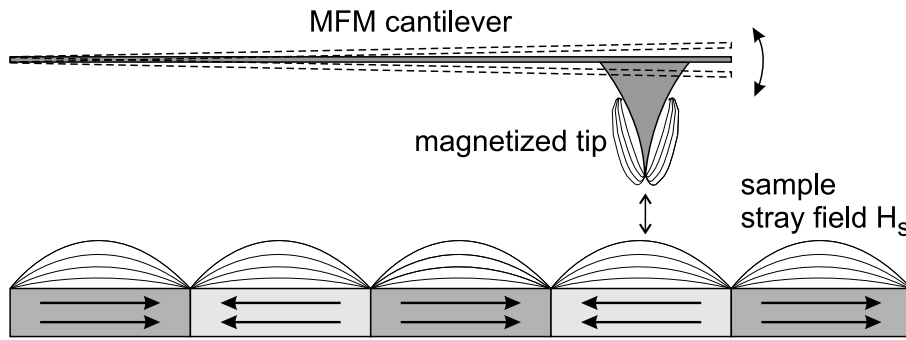
### 2.1.2 Magnetische Rasterkraftmikroskopie

Eine Standardvariante der SFM zur Abbildung von Oberflächen auf Nanometerskala ist das AFM (engl. *atomic force microscope*). Die Sonden bestehen aus feinen Si-Pyramiden am Ende eines langen, parallel zur Probenoberfläche geführten Si-Balkens (Cantilever). Über die Reflexion eines Laserstrahls kann die Auslenkung des Cantilevers bei Annäherung an die Probe gemessen werden. Bei dem sog. statischen AFM befindet sich die Spitze in ständigem Kontakt zur Oberfläche. Bei seitlicher Bewegung wird der Cantilever verbogen, und über die Ablenkung des Laserstrahls wird die Topographie direkt abgebildet. Eine deutlich höhere Haltbarkeit der Spitzen kann mit einem dynamischen AFM erreicht werden. Der Cantilever wird nahe seiner Resonanzfrequenz zum Schwingen angeregt, so dass eine periodische Bewegung der Spitze parallel zur Richtung der Oberflächennormale der Probe zustande kommt. Die durch eine periodische Kraft  $F_0 \cos(\omega t)$  erzwungenen Schwingungen des Cantilevers der Masse  $m$ , Federkonstante  $k$  und einer Dämpfung  $\beta$  lassen sich unter der Annahme kleiner Auslenkungen durch die einfache Bewegungsgleichung

$$m \frac{\partial^2 z'}{\partial t^2} + \beta \frac{\partial z'}{\partial t} + k z' = F_0 \cos(\omega t), \quad z' = z - z_0 \quad (2.6)$$

des gedämpften harmonischen Oszillators beschreiben, wobei  $z$  die Richtung parallel zur Oberflächennormale darstellt. In Ruhestellung nimmt die Spitze des Cantilevers die Position  $z_0$  ein ( $z_0$  = Abstand zur Probe). Jede Störung der Oszillation durch Einwirkung wechselwirkender Kräfte zwischen Spitze und Probe führt zu einer (zusätzlichen) Phasenverschiebung  $\Delta\phi$  sowie einer Beeinträchtigung der Schwingungsamplitude  $z_{\max}$ . Mittels Lock-In-Detektion kann diese Verstimmung aufgezeichnet und in ein Kontrastsignal der Topographie umgewandelt werden. Beim dynamischen AFM sind zwei Modi möglich. Bei völliger Kontaktfreiheit, d. h. kleinen Schwingungsamplituden, arbeitet das AFM im NC-Modus (NC = *non-contact*). Dagegen können große Amplituden des Cantilevers zum periodischen Aufsetzen der Spitze führen, dem sogenannten *tapping*.

Das MFM baut auf der Technik des AFM auf. Der Unterschied besteht in der Wahl des Cantilevers, die jetzt mit einem Ferromagnetikum (z. B. Co) beschichtet sind. Proben mit magnetischen Strukturen erzeugen Streufelder an der Oberfläche der Probe, die mit der in  $z$ -Richtung magnetisierten Spitze wechselwirken.



**Abbildung 2.6:** Prinzip der magnetischen Rasterkraftmikroskopie (MFM). Die magnetisierte Spitze eines Co-beschichteten AFM-Cantilevers wechselwirkt mit dem magnetischen Streufeld  $\vec{H}_s$  der Probe. Die Detektion erfolgt im NC-Modus (*non-contact*).

Abbildung 2.6 stellt die Geometrie des Verfahrens schematisch dar. Das MFM wird im NC-Modus betrieben. Bei geeigneter Wahl des Sonde-Proben-Abstandes  $z_0$  und der Schwingungsamplitude  $z'_{max}$  dominiert die magnetostatische Kraft, so dass der abgebildete Kontrast mit der Stärke des Streufeldes unmittelbar zusammenhängt. Die Aufnahme eines Flächenscans kann so den Verlauf von Domänen an der Oberfläche der Probe sichtbar machen.

Die analytische Behandlung des Einflusses einer magnetostatischen Kraft  $F_{mag}(z)$ , die auf der rechten Seite in Gl. 2.6 einen Zusatzterm bildet, kann sich als sehr schwierig erweisen. Insbesondere kann die Nichtlinearität dieser Kraft zu anharmonischen Effekten führen [22]. Für kleine Auslenkungen der Spitze gegenüber dem Abstand zur Probe  $z_0$  kann  $F_{mag}(z)$  um  $z_0$  in eine Taylorreihe entwickelt und können Terme höherer Ordnung  $\mathcal{O}[(z - z_0)^2]$  vernachlässigt werden. Den Gradienten  $\partial F_{mag}/\partial z$  kann man als additiven Term in einer effektiven Federkonstante des Cantilevers betrachten:

$$k_{eff} = k - \left. \frac{\partial F_{mag}}{\partial z} \right|_{z=z_0}. \quad (2.7)$$

Demnach verändert sich die Resonanzfrequenz entsprechend

$$\omega = \omega_0 \sqrt{1 - \frac{1}{k} \frac{\partial F_{mag}}{\partial z}}. \quad (2.8)$$

Damit wird die Ableitung  $F'_{mag}(z)$  im MFM detektierbar. Die örtlich veränderliche magnetostatische Kraft verursacht einen Kontrast im Signal.

Zur Interpretation des MFM-Kontrasts in Bezug auf das detektierte Streufeld muss die konkrete Geometrie der Spitze bekannt sein. Allgemein gilt für die Kraft  $F_{mag}$  bei im Streufeld der Probe befindlichen magnetischen Momenten  $\vec{m}$  der Spitze

$$\vec{F}_{mag} = \mu_0 \vec{m} \cdot \nabla \vec{H}_s. \quad (2.9)$$

Wegen  $\partial F_{mag}/\partial z$  werden die zweiten Ableitungen von  $\vec{H}_s$  als Kontrast detektiert. Da die Spitze üblicherweise in  $z$ -Richtung magnetisiert ist, wird im wesentlichen



$\partial^2 H_s / \partial z^2$  abgebildet. Eine weitergehende Analyse der MFM-Aufnahmen erfordert eine detaillierte Kontrastmodellierung (siehe [22]).

## 2.2 Ortsaufgelöste Lumineszenzspektroskopie

Optische Eigenschaften von Halbleiterstrukturen können in verschiedenen Verfahren untersucht werden. Prinzipiell müssen in der Probe angeregte Ladungsträger erzeugt werden, deren Relaxation und Rekombination zur Emission einer charakteristischen Lumineszenz führt. Nach der Art der Anregung unterscheidet man optische und elektronische Methoden:

- **$\mu$ -Photolumineszenz ( $\mu$ -PL):** optische Anregung und Detektion mittels Lichtmikroskop. Durch konfokale Mikroskopie kann eine Ortsauflösung  $\Delta x \sim 1 \mu\text{m}$  erreicht werden.
- **SNOM:** optische Anregung und/oder Detektion durch eine Nahfeldsonde. Die Ortsauflösung kann bis  $\lambda/40$  betragen [23]. Die transmittierte Strahlungsleistung ist gegenüber der  $\mu$ -PL jedoch gering.
- **Kathodolumineszenz (CL):** punktuelle Anregung der Probe mit einem fokussierten, hochenergetischen Elektronenstrahl (1–40 keV). Durch die Erzeugung von Sekundärelektronen in der Probe wird das Anregungsvolumen allerdings vergrößert. Die Eindringtiefe kann wenige zehntel bis mehrere Mikrometer betragen.
- **Rastertunnellumineszenz (STL):** Niederenergetische elektronische Anregung mit der Tunnelelektrode eines STM ( $\lesssim 100$  eV). Hohe laterale Auflösung, wenn die Diffusion der injizierten Ladungsträger gering ist.

Die ortsaufgelöste oder  $\mu$ -PL ist eine relativ einfache optische Untersuchungsmethode. Der instrumentelle Aufbau besteht z. B. aus einer Laserlichtquelle, einem Mikroskop inkl. Probentisch mit  $x$ - $y$ -Schrittmotorsteuerung und einem Monochromator/Spektrometer mit CCD-Kamera (CCD = *charge coupled device*). Für Tieftemperaturmessungen stehen spezielle Kryostaten zur Verfügung, die auf den Mikroskop montiert werden. Die Probe ist dann durch ein Fenster zugänglich, wobei der Abstand zwischen Probe und Mikroskopobjektiv aufgrund der Gestalt des Kryostaten möglichst gering gehalten werden kann. Das Laserlicht wird über halbdurchlässige Spiegel in den Strahlengang des Mikroskops gebracht und mit dem Objektiv auf einen Punkt auf der Probe fokussiert. Das Antwortsignal der Probe wird über dasselbe Objektiv gesammelt und in den Monochromator geleitet. Eine hohe laterale wie Tiefenauflösung wird erreicht, indem der untersuchte Punkt der Probe konfokal auf eine Blende abgebildet wird. Mit dieser Methode lässt sich der Einfluss von Diffusionseffekten bei untersuchten Halbleiterproben unterdrücken. Dennoch ist die Auflösung durch das bekannte Rayleigh-Kriterium der klassischen Optik

$$d = 1,22 \cdot \frac{\lambda}{2n \sin \theta} \longrightarrow \approx \frac{\lambda}{2} \quad (2.10)$$

beschränkt ( $n$  = Brechungsindex des umgebenden Mediums;  $\theta$  = halber Öffnungswinkel des Objektivs). In der Praxis liegt die laterale Auflösung in der Größenordnung von  $1\ \mu\text{m}$ . Bei dem Verfahren der  $\mu$ -PL ist die Tiefenauflösung im wesentlichen durch das Beer-Lambertsche Gesetz  $I = I_0 e^{-\alpha(\lambda)z}$  bestimmt, das mit dem wellenlängenabhängigen Absorptionskoeffizienten  $\alpha$  zu einem exponentiellen Abklingen der Intensität  $I$  des Lichtes führt. Typische Werte der Eindringtiefe  $z_{1/e} = 1/\alpha$  für GaAs bei Raumtemperatur sind z. B.  $z_{1/e} = 360\ \text{nm}$  ( $h\nu = 1,8\ \text{eV}$ ) und  $z_{1/e} = 230\ \text{nm}$  ( $h\nu = 2,0\ \text{eV}$ ). Die Methode der Photolumineszenz (PL) bedient sich einer festen Anregungsenergie und detektiert wellenlängen- bzw. energieaufgelöst. In umgekehrter Weise kann mit variabler Anregung (PLE = *photoluminescence excitation*) und Detektion bei fester Wellenlänge ein Anregungsspektrum erzeugt werden.

Im vorangegangenen Abschnitt wurden die Möglichkeiten aufgezeigt, die der Einsatz eines SNOM in Bezug auf die hohe laterale Ortsauflösung bietet. Ein weiterer Vorteil ist, dass durchstimmbare Lichtquellen (Laser) verwendet werden können, um ggf. resonant anzuregen. Der Preis dieser Methode ist allerdings der vergleichsweise hohe technische Aufwand verbunden mit einer hohen Empfindlichkeit der Nahfeldsonden, die schnell zur Zerstörung der Apertur führen kann. In Kap. 3 werden Aufbau und Wirkungsweise eines neuen Tieftemperatur-SNOMs zum Einsatz in der Halbleiterspektroskopie vorgestellt. Dort wird auch die Möglichkeit der Verwendung unbedampfter Glasfaserspitzen als Nahfeldsonden besprochen. Zwar gestatten derartige Sonden lediglich eine Ortsauflösung von  $\lambda/3$ . Sie erweisen sich aber wegen ihrer hohen Transmission und der langen Standzeit als günstige Alternative gegenüber metallbedampften Sonden mit Apertur.

Zur Anregung der Proben mittels Kathodolumineszenz werden hochenergetischen Elektronen durch eine Elektronenkanone erzeugt, die mit durchstimmbarer Beschleunigungsspannung im Bereich einiger 100 Volt bis zu einigen zehn Kilovolt arbeiten kann. Die in die Probe eingeschossenen Elektronen werden Primärelektronen genannt. In der Probe erzeugen sie ein Spektrum an Sekundärelektronen. Den Kern eines CL-Aufbaus bildet ein Rasterelektronenmikroskop (engl. *scanning electron microscope*, SEM) mit einem Strahldurchmesser im Fokus von nur wenigen Nanometern. Über die Rasterbewegung des Elektronenstrahls lassen sich Flächenscans durchführen, die zum einen die Oberfläche der Probe abbilden können (Sekundärelektronen), zum anderen eine orts aufgelöste CL ermöglichen. Der Vorteil dieser Methode liegt in der hohen Anregungsenergie, die es z. B. ermöglicht, Lumineszenzuntersuchungen an breitlückigen Halbleitern durchzuführen, für deren optische Anregung UV-Licht notwendig wäre. Allerdings setzt die Ladungswolke der Sekundärelektronen in der Probe der Ortsauflösung gewisse Grenzen. Die Eindringtiefe der Primärelektronen kann mehrere Mikrometer betragen. Eine bewährte Näherungsformel zur Berechnung der Eindringtiefe  $l_{e^-}$  in  $\mu\text{m}$  ist nach [24]

$$l_{e^-} = (0,0398/\rho)(E_{\text{acc}})^{7/4}, \quad (2.11)$$

bei der die Dichte  $\rho$  des betreffenden Materials und die Energie der Primärelektronen  $E_{\text{acc}}$  eingesetzt werden muss. Der Beschuss mit Elektronen lässt sich auch

dazu verwenden, durch lokale Injektion der Ladungsträger ortsaufgelöst Testströme zu erzeugen und nachzuweisen. Diese Methode wird EBIC genannt (engl. *electron beam induced current*).

Auf das Verfahren der STL soll an dieser Stelle nicht näher eingegangen werden. Entsprechende Literatur findet sich in [25, 26]. Die optische Nahfeldspektroskopie, durchgeführt in einem Tieftemperatur-SNOM (Kap. 3), bildet einen Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit. Die Untersuchungen an Quantenfilm- und Quantendrahtstrukturen in Kap. 4 stellen Bezüge zwischen optischer Nahfeldspektroskopie und den Methoden der  $\mu$ -PL und der CL her. Dabei werden die Vorteile des SNOM deutlich, die in der Kombination von Rasterkraftmikroskopie und optischer Subwellenlängenauflösung liegen.



# Kapitel 3

## Optisches Tieftemperatur-Nahfeldmikroskop

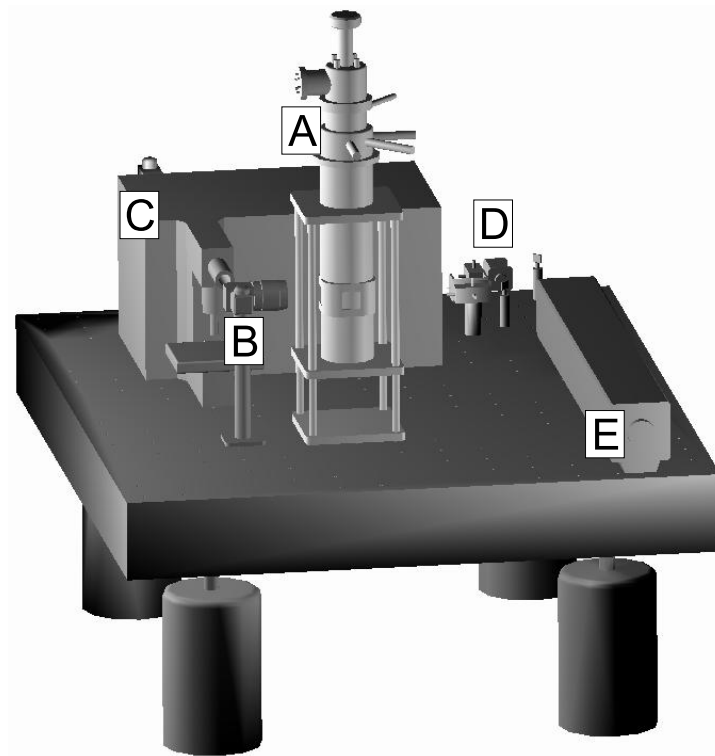
Der Einsatz optischer Nahfeldmikroskope in der Grundlagenforschung ist eine relativ junge Entwicklung der Wissenschaft seit Beginn der 90-er Jahre des 20. Jahrhunderts. Der kommerzielle wissenschaftliche Gerätebau hat diese Entwicklung zwar aufgegriffen, jedoch ist der Umfang der Palette marktfähiger Produkte gegenwärtig primär auf den Einsatz in der biologisch-medizinischen Forschung beschränkt, bei der die Untersuchungen bei Raumtemperatur durchgeführt werden. Für den Physiker erwächst daraus die Notwendigkeit, eigene, auf die experimentellen Bedürfnisse zugeschnittene, Instrumente zu entwickeln. In diesem Kapitel soll der Aufbau und die Arbeitsweise einer neuartigen Variante eines Tieftemperatur-SNOMs in Reflexionsgeometrie für den Einsatz in der ortsaufgelösten Halbleiterspektroskopie vorgestellt werden. Das Gerät war auf der Grundlage eines kommerziellen Rastertunnelmikroskops in Zusammenarbeit mit der Fa. Omicron sowie der Fa. Cryovac konzipiert worden. Desweiteren wird der Einsatz geätzter, unbedampfter Glasfaserspitzen als Nahfeldsonden für spektroskopische Zwecke motiviert. Der Topographie-Modus des Systems zeichnet sich durch eine hohe  $z$ -Sensitivität bis hin zur Auflösung von Monolagenstufen aus. Dazu werden Beispiele topographischer Aufnahmen von epitaktischen Schichten (GaN, GaAs) vorgestellt.

### 3.1 Aufbau

Der Aufbau des kompletten Systems bestehend aus Nahfeldmikroskop, Laser-Anregungsquelle und Spektrometer ist in Abb. 3.1 gezeigt. Wie üblich bei optischen Experimenten, wurden alle Komponenten mit Ausnahme der Vakuum- und der Kühlmittelpumpe auf einem vibrationsgedämpften optischen Tisch untergebracht. Als Anregungsquelle für die optischen Experimente wurde ein  $\text{Kr}^+$ -Ionen-Laser<sup>1</sup> gewählt, für den drei verschiedene Paar Resonatorspiegel mit Linien in einem Wellenlängenbereich von Violett (407 nm) bis Rot (676 nm) zur Verfügung stehen. Zusätzlich stehen auch durchstimbare Laser wie z. B. ein

---

<sup>1</sup>Innova 301 von Fa. Coherent; max. 600 mW bei 646 nm; leistungsstabilisiert



**Abbildung 3.1:** Der Aufbau des Tieftemperatur-Nahfeldmikroskops im Überblick. Alle optischen Komponenten sind auf einem vibrationsgedämpften optischen Tisch installiert: (A) Helium-Durchfluss-Kryostat mit Mikroskopeinsatz, (B) Fernfeld-Objektiv, (C) Gitterspektrometer, (D) Fasereinkoppler und (E)  $\text{Kr}^+$ -Ionen-Laser mit festen Wellenlängen zwischen 407 nm und 676 nm.

Ti:Saphir-Laser in den Wellenlängenbereichen 700 – 1000 nm oder ein Farbstoff-Laser (z. B. mit Pyridin 2: 690 – 770 nm) zur Verfügung. Das Licht wird in eine geeignete monomodige Glasfaser eingekoppelt und zum Nahfeldmikroskop geleitet. Das eingesetzte Spektrometer<sup>2</sup> besitzt einen Einfachmonochromator mit optischen Dispersionsgittern von 600 l/mm bzw. 1800 l/mm und einem Fokus von 300 mm. Das optische Spektrum wird mit einer CCD-Kamera aufgenommen, bestehend aus  $298 \times 1152$  Detektorelementen. Das optische Signal kann über das Fernfeld-Objektiv oder direkt über einen Glasfasereingang ins Spektrometer geführt werden. Der He-Durchfluss-Kryostat wurde zusammen mit dem Mikroskopeinsatz von der Fa. Cryovac nach Absprache speziell für das SNOM-Experiment angefertigt. Insbesondere sind Sichtfenster in die Kammerwände eingebaut, die einen optischen Zugang des Fernfeld-Objektivs unter einem Winkel von  $10^\circ$  gestatten. Das Vakuumsystem ist auf einen Druckbereich von  $1 \times 10^{-5}$  mbar (Hochvakuum) ausgelegt; Messkammer und Isoliervakuum werden separat gepumpt. Die Kühlung des Kryostaten kann in zwei Arbeitsweisen erfolgen. Der Einsatz eines Austauschgases in der Messkammer führt zu schnelleren Kühlraten, birgt aber die Gefahr von Spannungsüberschlägen der Scanner-

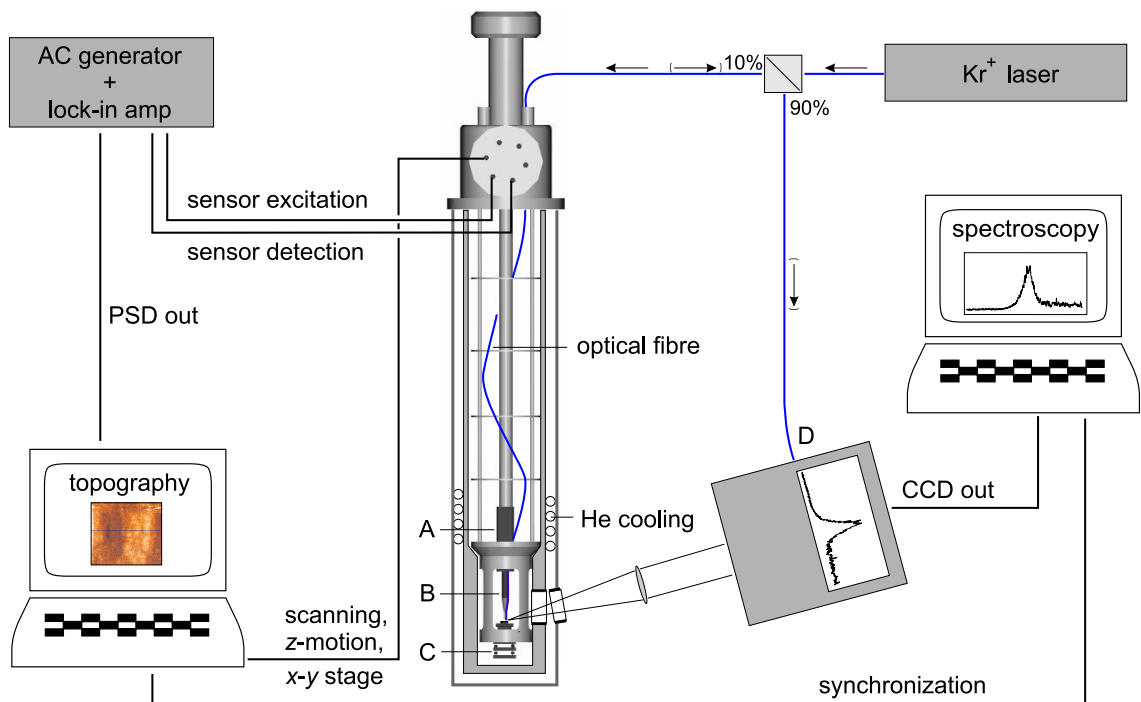
<sup>2</sup>Labram-System, Fa. Dilor

Elektronik. Ohne Austauschgas erfolgt die Kühlung über Wärmeleitung zwischen innerer Kammerwand und Mikroskopeinsatz durch eine groß gestaltete Auflagefläche. Allerdings ist bei dieser Arbeitsweise die Kühlrate mit ca.  $40 \text{ Kh}^{-1}$  deutlich niedriger als unter Verwendung eines Austauschgases.

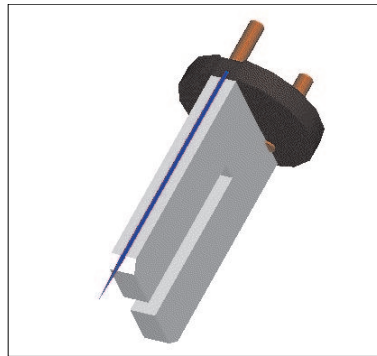
Der optische Signalweg gestaltet sich wie folgt. Das Licht der Anregungsquelle durchläuft einen halbdurchlässigen Strahlteiler und wird daraufhin in eine monomodige Glasfaser eingekoppelt. Diese Faser kann dann mit der Faser der Nahfeldsonde (gleicher Typ) über einen Klemmkoppler verbunden werden. An dieser Schnittstelle wird die eingekoppelte Leistung gemessen. Über die Nahfeldsonde gelangt das Licht zur Probe. Im Illuminationsmodus sammelt das Fernfeld-Objektiv das von der Probe reflektierte Licht. Ist ein Illuminations-/Kollektionsmodus gewählt, so wird das Signal der Probe von der Nahfeldsonde aufgesammelt und über die Faser in den Strahlengang des halbdurchlässigen Strahlteilers ausgekoppelt. Der Strahlteiler besitzt für Signale im Wellenlängenbereich zwischen  $700 - 800 \text{ nm}$  eine hohe Reflektivität (ca. 90%). Das so reflektierte Licht wird wiederum in eine Faser eingekoppelt und zum Glasfasereingang des Spektrometers geführt. Um die zweite Einkopplung zu erleichtern, wird hier eine Multimodenfaser verwendet. Alternativ kann das Licht der Anregungsquelle direkt in den Strahlengang des Fernfeld-Objektivs gebracht und die Probe unter dem Winkel von  $10^\circ$  beleuchtet werden. In diesem Kollektionsmodus sammelt die Nahfeldsonde lediglich das Licht, ohne selbst anzuregen. Analog zum Illuminations-/Kollektionsmodus gelangt das Signal zum Glasfasereingang des Spektrometers.

In Abb. 3.2 sind die optischen Signalwege für den Illuminations- sowie den Illuminations-/Kollektionsmodus zusammen mit dem Mikroskopeinsatz und der Abstandssteuerung der Rastersonde schematisch dargestellt. Das eigentliche Nahfeldmikroskop befindet sich im unteren Teil des Kryostaten. Die Komponenten sind dem Tieftemperatur-Tunnelmikroskop «LT-STM» der Fa. Omicron entnommen. Es besteht aus einem  $x$ - $y$ -Probentisch und einem separaten  $z$ -Schlitten, der die am Ende eines Piezoröhrchens befestigte Nahfeldsonde senkrecht zur Probenoberfläche führt. Die Bewegung des Tisches und des Schlittens wird über einen *stick-and-slip*-Mechanismus mit Ultraschallanregung realisiert [27]. Wegen der erforderlichen großen Flächenscans (mind.  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  bei tiefen Temperaturen) wurde ein längeres Piezoröhrchen eingesetzt, um gegenüber dem STM eine höhere seitliche Auslenkung (Deflektion) zu erreichen.

Die Kontrolle des Abstandes zwischen Sonde und Probe basiert auf der Methode der Scherkraft-Messung nach Karrai und Grober [28]. Die Nahfeldsonde wird dabei längsseitig an der Zinke einer Quarz-Stimmgabel (elektr. Schwingquarz) mit einem Cyanoacryl-Sekundenkleber befestigt, wie in Abb. 3.3 gezeigt ist. Die Sonde steht am Ende der Zinke ca.  $0,5 \text{ mm}$  über. Der Quarz wird bei der Resonanzfrequenz  $f \approx f_0$  ( $f_0 = 32,768 \text{ kHz}$ ) elektrisch angeregt. Da die Sondenachse parallel zur Oberflächennormale der Probe orientiert ist und die Auslenkungen der Zinken senkrecht zu dieser Achse erfolgen, schwingt die Sondenspitze parallel zur Probenoberfläche. Bei Annäherung an die Probe tritt ein Wechselwirkungsmechanismus in Erscheinung, der über eine Scherkraftwirkung die Resonanzbedingungen des Systems ändert. Der Q-Faktor, d. h. die Güte des Resona-



**Abbildung 3.2:** Schematische Darstellung des optischen Signalwegs (rechts) und der Abstands- bzw. Positionskontrolle der Nahfeldsonde im Topographiemodus (links). Der Aufbau des Mikroskops ist im Schnitt durch den Kryostaten gezeigt (Mitte). (A) z-Schlitten des Scanners, (B) Piezo-Röhrchen mit Scan-Kopf und (C) Probestisch mit x-y-Grobpositionierung.



**Abbildung 3.3:** Konfiguration zur Abstandsregelung des SNOM.

tors, definiert als Verhältnis von Maximum und Halbwertsbreite der Resonanzkurve, wird kleiner (Dämpfung), und die Lage des Resonanzmaximums wird zu niedrigeren Frequenzen verschoben. Die entstehende Phasendifferenz  $\Delta\phi$  zwischen Anregung und Eigenfrequenz des Schwingquarzes kann mit einem Lock-In-Verstärker durch phasensensitive Detektion entsprechend

$$U_{DC} = 1/2 |U_{sig} U_{ref}| \cos \Delta\phi \quad (3.1)$$

( $U_{\text{sig}}$  bzw.  $U_{\text{ref}}$  = Amplitude des Signals bzw. des Referenzsignals) in eine Gleichspannung umgewandelt werden, die als Rückkopplungssignal dient. Im *constant height mode* (CHM) bleibt die Höhe der Sonde während eines Scans über der Oberfläche konstant. Die Veränderung des Gleichspannungssignals  $U_{\text{DC}}$  ergibt die Höhenmodulation der Topographie. Der CHM ist nur für flache Probenoberflächen geeignet, bei denen die Gefahr einer Kollision gering ist. Außerdem führt die Nichtlinearität der Kraft-Abstands-Kurve zu einem verzerrten Topographiebild. Das hier vorgestellte System arbeitet im *constant gap mode* (CGM), bei dem der Abstand zwischen Sonde und Probe über die Längenausdehnung des Piezoröhrchens konstant gehalten wird. Die Elektronik regelt auf eine konstante Gleichspannung  $U_{\text{DC}}$ , die durch einen festgelegten *feedback*-Wert definiert ist.

Die Art der Wechselwirkung im Bereich tiefer Temperaturen wird in der Literatur kontrovers diskutiert. Kapillarkräfte müssen aufgrund des Ausfrierens des Flüssigkeitsfilms auf der Probenoberfläche ausgeschlossen werden. In den Kraft-Abstandskurven ist vielmehr eine starke Abhängigkeit der Wechselwirkung in einem Bereich von wenigen Nanometern über der Oberfläche zu erkennen, was auf kurzreichweitige van-der-Waals-Kräfte schließen lässt. Andererseits fanden Gregor *et al.* [29] Indizien für einen Biegekraftmechanismus, der durch den direkten Kontakt der Sondenspitze mit der Probenoberfläche hervorgerufen wird. Beim Aufsetzen der Spitze wird die Dämpfung der Schwingung über die Steifigkeit der Sonde vermittelt.

Die Abstandsregelung über einen Schwingquarz nach [28] ist gegenwärtig die am häufigsten angewendete Methode. Die Schwingungen des Quarzes werden meist mechanisch über einen zweiten Quarz bzw. ein zusätzliches piezoelektrisches Keramikröhrchen mit seitlicher Zitterbewegung angeregt. Dem gegenüber steht die Verwendung eines einzelnen Schwingquarzes, der gleichermaßen als Aktuator sowie als Sensor dient, nach einer Methode von Hsu *et al.* [30]. Die Dämpfung wird als veränderlicher kapazitiver Widerstand des Quarzes in einer RC-Brücke gemessen. Eine noch einfachere, aber ebenso wirkungsvolle Methode wurde in der hier vorgestellten elektromechanischen Abstandsregelung implementiert. Abbildung 3.4 zeigt die elektronische Schaltung, in der der Schwingquarz als einfacher Zweipol in die Strecke zwischen Wechselspannungsgenerator und Lock-In-Verstärker geschaltet ist. Das detektierte Signal wird zusätzlich von einem AC-Vorverstärker aufgearbeitet.<sup>3</sup>

Die Positionssteuerung der Nahfeldsonde ist mit der Aufnahme von Spektren

<sup>3</sup>Es soll kurz erwähnt werden, dass es auch andere Varianten der Abstandsmessung gibt. Man kann beispielsweise die Metallapertur der Nahfeldsonde als Elektrode zur Injektion eines Tunnelstroms zwischen SNOM-Spitze und Probe verwenden und den Abstand beider über die Tunnelstromstärke regeln [31]. Sehr häufig findet die optische Detektion wie die *pinhole*-Methode nach Betzig *et al.* [32], die Laser-interferometrische Detektion nach Toledo-Crow *et al.* [33] oder die Detektion der Beugungsmaxima eines Laserstrahls an der Faser [34] Verwendung. Alle drei optischen Methoden benötigen einen Photodetektor, der die Modulation der durch die schwingende Faser hervorgerufenen Intensitätsoszillationen in ein AC-Signal wandelt. Für die Verwendung in einem SNOM für Tieftemperatur-Halbleiterspektroskopie sind optische Methoden jedoch ungeeignet, da die Justage im Kryostaten zu aufwändig wäre und zudem das Streulicht der Detektionslaser die spektroskopischen Bedingungen beeinflusst.

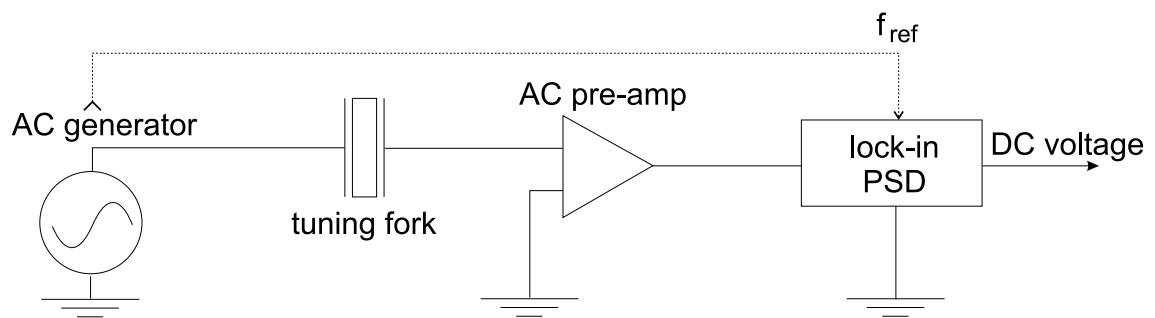


Abbildung 3.4: Schaltbild der piezoelektrischen Abstandsdetektion.

synchronisiert (siehe Abb. 3.1). Die Sonde fährt einen vorher definierten Weg (Linien- oder Flächenscan) schrittweise ab. Vor jedem Schritt wartet die Steuerung auf ein Freigabesignal des Spektrometers nach beendeter Aufnahme eines Spektrums. Die Wahl der Schrittweite hängt von der Auflösung der Nahfeldsonde (Aperturdurchmesser) ab.

Es gibt handelsübliche Nahfeldsonden spezieller Anbieter (z. B. Fa. Nanonics oder Fa. Nt-Mdt), deren Stückpreis z. Zt. bei etwa 100,- Euro liegt. Es hat sich aber gezeigt, dass sich die Verwendung dieser Sonden für die Spektroskopie an Halbleiterstrukturen als ungünstig erweisen kann. Der Vorteil einer hohen Ortsauflösung wird durch Nachteile wie kurze Standzeiten und eine geringe Transmission (besonders im Kollektionsmodus) beeinträchtigt. Im nächsten Abschnitt wird beschrieben, welche Alternativen der Einsatz unbedampfter, geätzter Spitzen eigener Herstellung bietet.

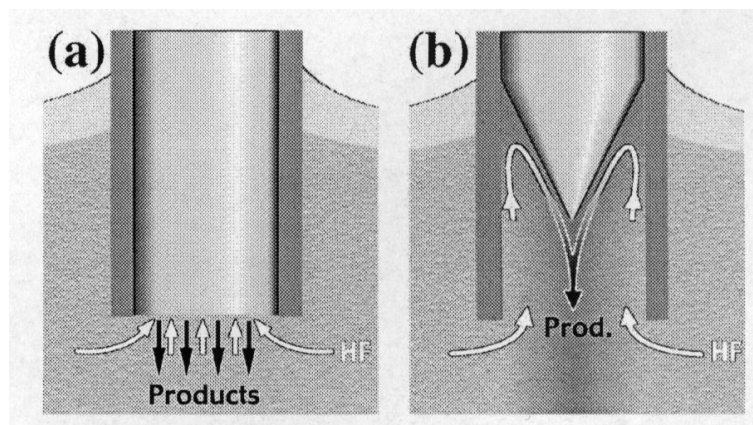
## 3.2 SNOM-Spitzen

### 3.2.1 Herstellung

In den letzten Jahren haben sich zwei Methoden zur Herstellung von Glasfaser- und Polymerfaserspitzen für den Einsatz als Nahfeldsonde im SNOM etabliert. Die erste und bis in die heutige Zeit gängigste Methode ist das adiabatische Ziehen der mit einem CO<sub>2</sub>-Infrarot-Laser erhitzten Faser (engl. *heating-and-pulling*) bis zum Abriss der Faser bei Erreichen eines kritischen Radius' [23, 35].

In Konkurrenz dazu tritt heute mehr und mehr das Verfahren des Spitzen-Ätzens in Fluorwasserstoffsäure (HF). An erster Stelle soll hier die sog. Turner-Methode erwähnt werden [36], bei welcher die vom Polymer-Mantel befreite Faser senkrecht in das mit einer organischen Schicht (z. B. Iso-Oktan oder Parafinöl) bedeckte HF-Bad getaucht wird. Der im Bad befindliche Teil der Faser wird komplett abgeätzt. Oberhalb des HF-Spiegels bestimmt der Meniskus den Ätzprozess. Durch die Deckschicht wird ein 'Kriechen' der Säure (hoher Meniskus) verhindert. Mit zunehmender Höhe nimmt die Ätzrate ab, und das Faserende wird kegelförmig. Damit sinkt aber auch die Höhe des Meniskus, was letztlich die Bildung der Faserspitze vorantreibt. Winkel



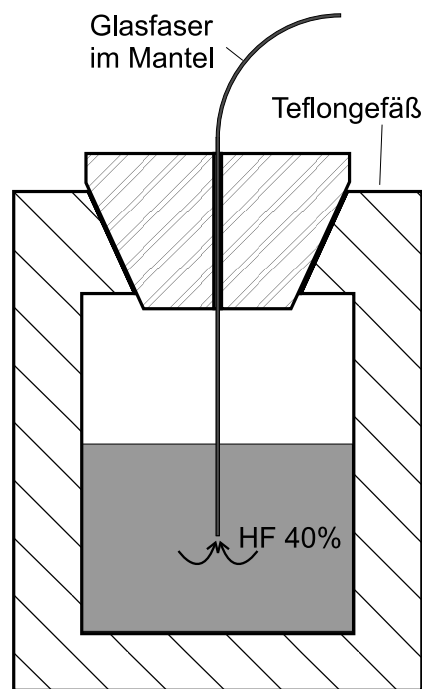


**Abbildung 3.5:** Schematische Darstellung des Ätzprozesses beim *tube-etching*-Verfahren nach [37]. (a) Beginn des Prozesses und (b) Mikrokonvektion bei fortschreitendem Ätzen in den Polymermantel.

und Oberflächenrauigkeiten der Spitzen hängen von der Wahl der organischen Schicht ab.

Eine Vereinfachung dieses Verfahrens ist die Methode nach Stöckle *et al.* [37], bei der das Ätzen der Faser in ihrem Polymer-Mantel erfolgt (engl. *tube etching*). Neben der einfacheren Handhabung erzielt diese Methode deutlich geringere Oberflächenrauigkeiten und eine hohe Symmetrie der Spitzenform. Der Ätzprozess kann anhand der schematischen Darstellung in Abb. 3.5 erläutert werden. Bei Beginn des Prozesses greift die Flusssäure an der Grundfläche des Glaszylinders an. Da die Ätzrate am Rande höher ist als im Zentrum, ist die Abtragung des Fasermaterials ungleichmäßig. Es kommt zur Ausbildung eines Kegelstumpfes. Bei fortschreitendem Ätzen bleibt der Winkel des Kegels erhalten, so dass sich eine Spitze bildet. Es stellt sich eine Mikro-Konvektion ein, die durch einen Zustrom der HF-Säure an der Innenseite des Polymermantels und einen Gegenstrom der chemischen Reaktionsprodukte ( $\text{SiO}_2$  und  $\text{H}_2\text{SiF}_6$ ) in der Mitte gekennzeichnet ist [Abb. 3.5 (b)]. Die treibenden Kräfte der Konvektion sind die Schwerkraft, die die Reaktionsprodukte aus der Röhre entfernt, sowie der Konzentrationsgradient der HF-Säure. Die Mindestdauer des Prozesses bei Raumtemperatur und Verwendung von 40%-iger HF-Säure wird mit ca. 90 min angegeben [37]. Die Ätzzeit hat keinen Einfluss auf die Beschaffenheit der Oberfläche und den Spitzenwinkel. Dahingegen ist die Qualität der Spitze — insbesondere der Winkel — abhängig von der Konzentration der Säure, der Temperatur sowie dem verwendeten Fasermaterial.

Zur Herstellung der Nahfeldsonden, die in dieser Arbeit Verwendung fanden, wurde eine einfache Vorrichtung benutzt, wie in Abb. 3.6 gezeigt ist. Ein zylindrischer Behälter aus Teflon (inkl. Pfropfen) ist mit HF etwa zur Hälfte gefüllt. Die Faser wird durch eine mittige, passgerechte Bohrung im Teflonpfropfen senkrecht im HF-Bad gehalten. Es wurde 40%ige HF-Säure verwendet und bei Raumtemperatur geätzt. Sonden, die aus den Monomodenfasern (FS-SN-3224 von Fa. 3M) geätzt wurden, zeigten eine sehr gute Qualität. Der Polymermantel dieser



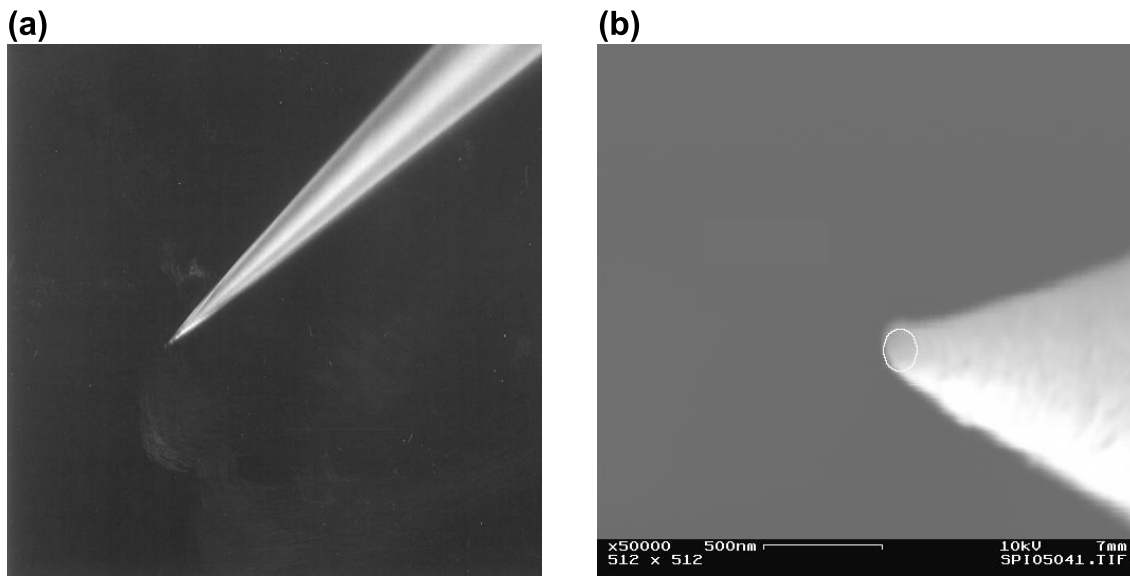
**Abbildung 3.6:** Anordnung zum Ätzen von Glasfaserspitzen.

Fasern ist für HF jedoch permeabel.<sup>4</sup> Daher durften die Fasern nur knapp eingetaucht werden, damit der eigentliche *tube-etching*-Prozess nicht durch ein seitliches Ätzen durch den Polymermantel hindurch überlagert wird. Nach einer Dauer von ca. 2 h wurden die Fasern für einige Stunden mit destilliertem Wasser gespült und anschließend der Polymermantel abgezogen. Dazu muss der Mantel ca. 1 cm oberhalb der Spitze mit einem Skalpell angeschnitten und das abziehende Stück für einige Sekunden in Dichlormethan aufgeweicht werden.

Abbildung 3.7 zeigt die Aufnahmen einer so gewonnenen Nahfeldsonde bei Betrachtung im Lichtmikroskop sowie im Elektronenmikroskop (SEM). Das Lichtmikroskop dient der einfachen Charakterisierung. Zwar ist die eigentliche Spitze aufgrund der Beugungserscheinungen nicht mehr auflösbar. Dennoch kann eine zuverlässige Beurteilung der Qualität der gesamten Sonde getroffen werden. Durch die Abbildung im SEM konnte der Spitzenradius bestimmt werden. Die Faser wurde zu diesem Zweck mit einer dünnen Goldschicht bedampft, um statische Aufladungseffekte zu verhindern, und unter einem Winkel von 45° unter der Elektronenkanone positioniert. Die SEM-Aufnahme in Abb. 3.7(b) gibt eine abgerundete Spitze mit einem Radius von ca. 80 nm wieder.

<sup>4</sup>Die Undurchlässigkeit des Mantelmaterials lässt sich einfach prüfen, indem man eine Faserschleife für ca. 1 h in die Säure hält und anschließend den Glaskörper unter einem Lichtmikroskop betrachtet.



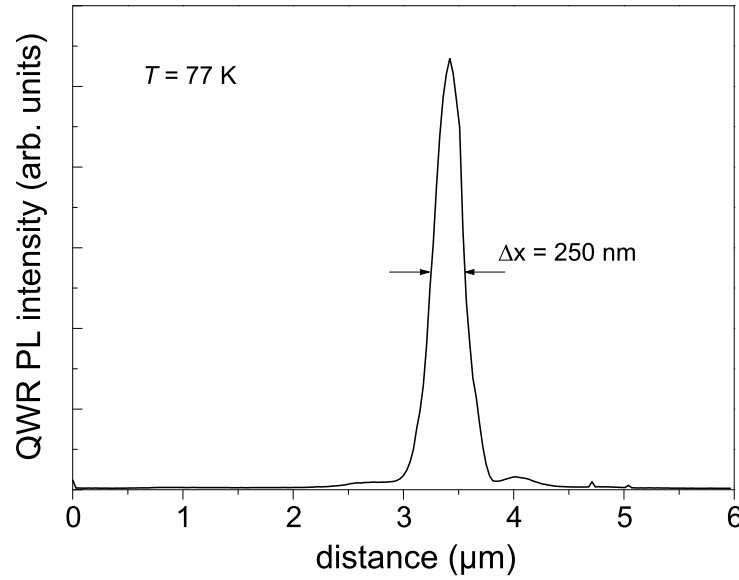


**Abbildung 3.7:** (a) Lichtmikroskopische Aufnahme einer HF-geätzten Nahfeldsonde, die mit dem *tube-etching*-Verfahren hergestellt wurde. Besonders hervorzuheben ist die glatte Oberfläche. (b) Das SEM-Bild gibt Aufschluss über den Spitzenradius (hier: ca. 80 nm).

### 3.2.2 Auflösungsvermögen unbedampfter Spitzen

In der traditionellen optischen Nahfeldmikroskopie besteht die Nahfeldsonde aus einer metallbeschichteten Glasfaser Spitze mit einer Apertur, deren Durchmesser klein gegenüber der Wellenlänge des verwendeten Lichtes ist (Subwellenlängendurchmesser). Eine solche Apertur kann man erzeugen, indem die Bedampfung der Sonde mit dem Metall — i. d. R. Aluminium — unter einem kleinen Winkel in Bezug auf die Sondenachse erfolgt, so dass die Spitze selbst abgeschattet wird. Eine andere Möglichkeit ist, in eine vollständig bedampfte Sonde mittels Ionenbeschusses (engl. *focussed ion beam*, FIB) eine Apertur zu schneiden [38, 39].

In der jüngeren Vergangenheit wurde gezeigt, dass auch Nahfeldsonden ohne metallische Beschichtung für die spektroskopische Analyse von Halbleiterstrukturen verwendet werden können [40, 41]. Der schlechteren lateralen Auflösung steht ein höherer Transmissionsgrad und eine längere Standzeit entgegen. Theoretische Berechnungen durch v. Freymann *et al.* [42, 43, 44] zeigen eine Subwellenlängenauflösung unbedampfter Spitzen unter Verwendung gekreuzter Polarisatoren zur Messung des depolarisierten Anteils des an der Grenzfläche zwischen Sonde und Probe reflektierten Lichtes. Müller und Lienau [45] berechneten die Propagation eines optischen Femtosekundenpulses durch eine zweidimensionale, konisch auslaufende, unbedampfte Sonde. Die Feldverteilung des *E*-Vektors unter der Spitze legt eine Auflösung im Bereich von 250 nm nahe. Diese Arbeiten lassen auf ein Auflösungsvermögen unbedampfter Nahfeldsonden von  $\lambda/3 - \lambda/4$  schließen. Es gibt jedoch auch kontroverse Meinungen in der Literatur, zum



**Abbildung 3.8:** Messung des Auflösungsvermögens einer unbedampften, geätzten Nahfeldsonde durch Detektion des PL-Signals eines Quantendrahtes. Die Halbwertsbreite der ortsabhängigen PL-Intensität beträgt 250 nm.

Beispiel vertreten durch Sandoghdar *et al.* [46], die sich bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen dahingehend decken, dass ein reiner Illuminationsmodus *nicht* zu einer verbesserten Ortsauflösung gegenüber klassischen optischen Fernfeldanregungen führt. Das Streulicht bzw. die Beugungserscheinungen der Sonde überwiegen eine Anregung der Probe im Nahfeld der Spitze. Erst das Zusammenspiel von Illuminations- und Kollektionsmodus führt zu einer stärkeren Nahfeldabhängigkeit des Signals, was in der vorliegenden Arbeit gezeigt wird.

Das Auflösungsvermögen der in dieser Arbeit verwendeten Nahfeldsonden konnte an einer Quantendrahtstruktur<sup>5</sup> getestet werden, bei der das Quantendrahtgebiet unter einer 50 nm dicken  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ -Schicht sowie einer 20 nm dicken GaAs Deckschicht lokalisiert war (Probe Nr. 52097). Dazu wurde ein 6 μm-Linienscan senkrecht zum Verlauf des Quantendrahtes durchgeführt und die PL im Illuminations-/Kollektionsmodus bei einer Temperatur von  $T = 77 \text{ K}$  und einer Anregungsenergie von  $h\nu = 2,38 \text{ eV}$  (520 nm) gemessen. In Abb. 3.8 ist das PL-Signal als Funktion des Ortes dargestellt. Über dem Quantendrahtgebiet kann die Quantendraht-PL auf einer Strecke von  $\Delta x_{\text{ges}} \approx 250 \text{ nm}$  (FWHM) beobachtet werden. Das räumliche Auflösungsvermögen der Nahfeldsonde wird aus der Faltung mit der Intensitätsverteilung  $\Delta x_{\text{PL}}$  der Quantendraht-PL bestimmt. Unter der Annahme gaußförmiger Verteilungen, deren Standardabweichungen sich bei Faltung quadratisch addieren, beträgt das Auflösungsvermögen der Sonde nach

$$\Delta x_{\text{Sonde}} = \sqrt{\Delta x_{\text{ges}}^2 - \Delta x_{\text{PL}}^2} \approx \sqrt{250^2 - 50^2} \quad (3.2)$$

<sup>5</sup>Siehe Kap. 4, S. 56, sowie [6].

ca. 240 nm. Hierbei wurde die Intensitätsverteilung der Quantendraht-PL durch die in [6] angegebene Breite des Quantendrahtgebietes (50 nm) ausgedrückt. Das Auflösungsvermögen der Nahfeldsonde liegt im Vergleich mit der Wellenlänge des detektierten Signals  $\lambda_{PL} = 760$  nm unterhalb  $\lambda/3$ , in Übereinstimmung mit den o. g. Angaben in der Literatur.

### 3.3 Monolagenauflösung der Topographie

Ein wesentlicher Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit ist die Demonstration und experimentelle Anwendung einer hohen z-Sensitivität des Scanners, welche deutlich in den Sub-Nanometerbereich bis hin zur Auflösung einzelner Monolagen führt. Im weiteren Verlauf des Abschnittes wird dies am Beispiel epitaktischer Schichten aus GaAs und GaN gezeigt.

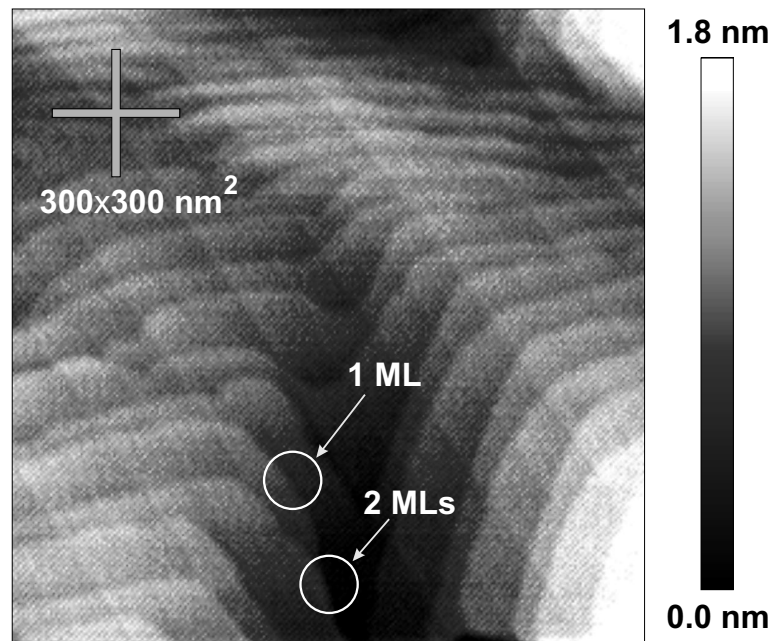
In der Literatur finden sich Arbeiten, die sich mit der prinzipiellen Auflösungsbeschränkung der Abstandsdetektion auf der Basis der Scherkraft-Methode beschäftigen [47]. Grober *et al.* [48] haben das Verhalten von Schwingquarzen in Bezug auf das thermische Rauschen des Detektors und der daraus resultierenden unteren Grenze der messbaren Kraft untersucht. Der Schwingquarz wurde in einem elektrischen Wechselstromkreis integriert, so dass die Detektion ausschließlich über elektronische Signalwege erfolgte. Der Quarz war atmosphärischen Bedingungen bei Raumtemperatur ausgesetzt und wurde ohne Einbezug einer Nahfeldsonde untersucht. Für die Beschreibung der Resonanzkurve des Schwingquarzes ist das Modell eines harmonischen Oszillators geeignet:

$$\frac{U_{\text{out}}}{U_{\text{in}}} = \frac{Af_0f/Q}{\sqrt{(f_0^2 - f^2)^2 + (f_0f/Q)^2}}. \quad (3.3)$$

Das Verhältnis zwischen Eingangs- und Ausgangsspannung  $U_{\text{out}}/U_{\text{in}}$  bei Resonanz ( $f = f_0$ ) wird maßgeblich durch den Qualitätsfaktor  $Q$  des Schwingquarzes bestimmt. Das thermische Untergrundrauschen (Johnson-Rauschen), dessen Quelle in den thermischen Schwingungen der Stimmgabel-Zinken liegt, bildet die untere Grenze des detektierbaren Signals. Die thermischen Schwingungen resultieren aus der Brownschen Bewegung der Moleküle des umgebenden Mediums. Das intrinsische Rauschen des Systems besitzt nach [48] folgende Abhängigkeiten:

$$U_{\text{rms}} \sim \sqrt{k_B T f_0 R / Q}. \quad (3.4)$$

Grober *et al.* [48] finden ein mittleres Spannungsrauschen von  $U_{\text{rms}} = 3,8 \mu\text{V}$  und können daraus über  $U = x/\alpha$  auf die mittlere Amplitudenfluktuation einer Zinke  $x_{\text{rms}} \approx 0,32$  pm schließen, wobei  $\alpha = 59,6$  pm/mV ein Kalibrierungsfaktor des Schwingquarzes ist. Durch Betrachtungen der Federkonstanten der Zinken als Funktion einer frequenzabhängigen effektiven Kraft kann die Grenze der Kraftdetektion mit  $0,62$  pN/ $\sqrt{\text{Hz}}$  angegeben werden ( $\sqrt{\text{Hz}}$  bezieht sich auf die Bandbreite des Rauschspektrums). Für den Realfall eines Quarz-Sonden-Systems kann in [48] ein linearer Zusammenhang zwischen der Schwingungsamplitude

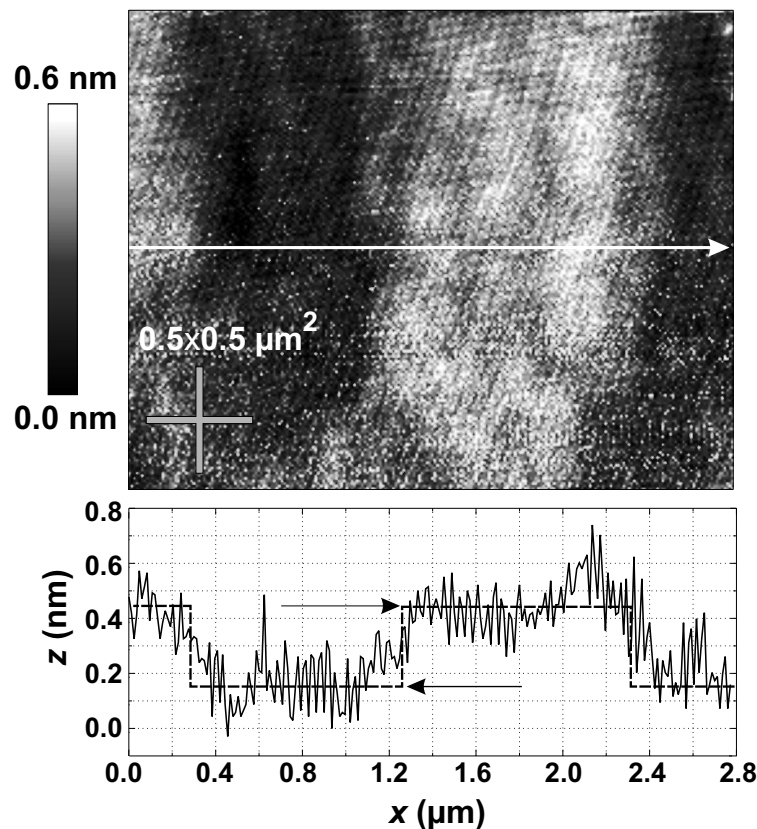


**Abbildung 3.9:** Topographische Aufnahme einer epitaktischen GaN-Schicht im Scherkraftmodus des SNOM bei  $T = 300$  K. Die Pfeile kennzeichnen Stufen einer Monolage bzw. Doppelstufen aus zwei Monolagen (1 ML bzw. 2 MLs).

$x$  (in pm) und dem Abstand zwischen Probe und Sonde  $z$  (in nm) festgestellt werden, woraus sich ein  $z$ -Rauschen von  $z_{\text{rms}} \approx 0,3$  nm ergibt. Eine hohe  $z$ -Auflösung der Abstandsdetektion nach der Scherkraftmethode im Subnanometerbereich ist demnach prinzipiell möglich. Die Durchführung der Messungen im Vakuum und bei tiefen Temperaturen wird die Auflösung darüber hinaus verbessern. Aus Gl. 3.4 kann gefolgert werden, dass der Schwingquarz einen möglichst großen  $Q$ -Faktor besitzen muss, um eine hohe Empfindlichkeit zu erreichen. Andererseits aber erhöht sich die Einschwingzeit des Systems proportional zu  $Q$ , was die Scangeschwindigkeit herabsetzt. In der Praxis des SNOM wird über Art und Menge des verwendeten Klebers zum Befestigen der Nahfeldsonde das Optimum des  $Q$ -Faktors ermittelt.

Dem Ziel einer hohen  $z$ -Auflösung kommen Cricenti *et al.* [49] nahe. Das in [49] vorgestellte SNOM arbeitet unter normalen Bedingungen (Raumtemperatur, Atmosphäre) auf der Grundlage optischer Scherkraftdetektion und kann topographische Strukturen mit  $\Delta z < 1$  nm abbilden. Über ein optisches Nahfeldmikroskop hoher  $z$ -Sensitivität, welches auf Grundlage der piezoelektrischen Scherkraft-Abstandsregelung bei variablen Temperaturen arbeitet, wurde in der Literatur bisher nicht berichtet.

Abbildung 3.9 gibt die im Scherkraftmodus detektierte Oberflächentopographie einer epitaktischen GaN-Schicht wieder. Die Aufnahme entstand bei Raumtemperatur und unter Hochvakuum. Als Sonde diente eine unbedampfte, geätzte Glasfaser Spitze. Das hexagonale GaN (Wurtzitstruktur) wurde als  $1 \mu\text{m}$  dicke Schicht auf einem 6H-SiC-Substrat mittels plasma-unterstützter Molekular-



**Abbildung 3.10:** Topographische Aufnahme der GaAs-Deckschicht einer Quantenfilmstruktur im Scherkraftmodus bei  $T = 13$  K. Im Linienscan zeigt sich eine mittlere Stufenhöhe von 0,3 nm zwischen zwei inselartigen Gebieten.

strahlepitaxie (PAMBE) gewachsen [50]. Die GaN[0001]-Achse ist parallel zur Wachstumsrichtung orientiert. In Richtung GaN[0001] kann der Aufbau der Einheitszelle als Stapelfolge Ga–N–Ga–N betrachtet werden. Eine GaN-Monolage hat damit die Höhe  $c/2 = 0,26$  nm. Die Morphologie der Probenoberfläche weist im allgemeinen Terrassen auf, die bis zu 200 nm breit sein können [51]. Sie resultieren aus einem Stufenflusswachstum mit überlagertem Spiralwachstum um Punkte mit Schraubenversetzungen. In Abb. 3.9 können diese Merkmale eindeutig anhand der geschwungenen bzw. horizontal verlaufenden Kontraste identifiziert werden. Die diagonal verlaufenden Streifen dagegen sind Artefakte, deren Position sich bei wiederholtem Scannen willkürlich ändert. Die Terrassen repräsentieren im allgemeinen Monolagenstufen, jedoch können zwei Terrassen ineinanderlaufen und so eine Doppelstufe mit 2 Monolagen Höhenunterschied bilden.

Als zweites Beispiel einer hohen  $z$ -Sensitivität zeigt Abb. 3.10 die Topographie der GaAs-Deckschicht einer Quantenfilm-Probe. Die Aufnahme entstand bei tiefen Temperaturen ( $T = 13$  K) ebenfalls unter Verwendung einer unbedampften, geätzten Glasfasersonde. In dem Bild können zwei benachbarte inselartige Gebiete mit einem Durchmesser von ca.  $1 \mu\text{m}$  ausgemacht werden. Im Linienscan



fil kann ein Höhenunterschied zwischen beiden Gebieten von 0,3 nm abgelesen werden. Dieser Wert stimmt mit der Dicke einer GaAs-Monolage (0,28 nm) gut überein. Das topographische Rauschen in z-Richtung beträgt 0,1 nm.

Die Merkmale der Oberflächentopographie beider Proben konnten durch Vergleich mit AFM-Messungen bestätigt werden. Diese Resultate stellen die Abstandsdetektion im Scherkraftmodus in Konkurrenz zu SNOM-Techniken, die den Einsatz von speziell präparierten AFM-Cantilevern vorsehen. Die Abstandsdetektion auf der Grundlage piezoelektrischer Messung der Scherkraft stellt eine einfache Methode für die Realisierung optischer Nahfeldmikroskopie bei tiefen Temperaturen dar. Die Verbindung von optischer Auflösung im Subwellenlängenbereich mit einer hohen z-Sensitivität im vorgestellten Tieftemperatur-SNOM führt zu neuen Möglichkeiten der orts aufgelösten Spektroskopie an Halbleiter-Nanostrukturen. Das optische Signal kann nunmehr mit Höhenfluktuationen der Probenoberfläche auf Subnanometerskala in Verbindung gebracht werden. In Kapitel 4 werden Messungen an Quantenfilmstrukturen vorgestellt, die u. a. die Beziehung zwischen Oberflächentopographie und räumlicher Verteilung der Emissionszentren monolagenaufgespaltener PL-Linien untersuchen. In Kapitel 5 kommt das SNOM als AFM zum Einsatz, um die elastische Deformation der Oberfläche epitaktischer MnAs-Schichten in Abhängigkeit von der Temperatur zu messen.

# Kapitel 4

## GaAs/(Al,Ga)As-Halbleiter-Heterostrukturen

Dieses Kapitel befasst sich mit der Untersuchung struktureller Einflüsse auf die elektronischen Eigenschaften in niederdimensionalen Halbleiter-Heterostrukturen aus GaAs/(Al,Ga)As. Zum einen werden Photolumineszenz-Messungen an GaAs-Quantenfilmen vorgestellt, die sich durch große Wachstumsinseln in beiden Grenzflächen auszeichnen. In einem weiteren Abschnitt werden Photostrommessungen an GaAs-Quantendrahtstrukturen behandelt, wobei sich der Quantendraht in der intrinsischen Zone einer *p-i-n*-Diode befindet. Die Experimente wurden mit dem in Kap. 3 vorgestellten optischen Rasternahfeldmikroskop durchgeführt.

### 4.1 Grundlagen

Die folgenden theoretischen Vorbetrachtungen sollen einen Überblick über die grundlegenden Eigenschaften niederdimensionaler Systeme geben. Für eine Einführung in die Grundbegriffe der Festkörperphysik und insbesondere der Halbleiterphysik (z. B. Löcher, Valenz- und Leitungsbandkante  $E_v$  und  $E_c$ , Bandlücke  $E_g$ ) wird auf die Standardliteratur verwiesen [52,53].

#### 4.1.1 Niederdimensionale Halbleiterstrukturen

Die Bewegung eines freien Elektrons der Masse  $m_0$  wird durch die Schrödingergleichung

$$-\frac{\hbar^2}{2m_0}\nabla^2\psi_{\vec{k}} = E(\vec{k})\psi_{\vec{k}} \quad (4.1)$$

beschrieben. Die Lösungen von Gl. 4.1 sind ebene Wellen der Form  $\psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{L^3}}e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$  mit der Energie

$$E(\vec{k}) = \frac{\hbar^2}{2m_0}(k_x^2 + k_y^2 + k_z^2). \quad (4.2)$$

Die Bewegung eines Elektrons<sup>1</sup> im periodischen Kristallpotenzial wird durch den Einteilchen-Hamiltonoperator

$$H^{1T} = -\frac{\hbar^2}{2m_0} \nabla^2 + U(\vec{r}), \quad U(\vec{r} + \vec{R}) = U(\vec{r}), \quad \vec{R} = \text{Gittervektor} \quad (4.3)$$

beschrieben. Die Lösungen der Schrödingergleichung  $H^{1T}\psi = E\psi$  sind Wellenfunktionen der Form

$$\psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{L^3}} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} u_{\vec{k}}(\vec{r}), \quad (L^3 = \text{Kristallvolumen}). \quad (4.4)$$

Die ebene Welle  $1/\sqrt{L^3} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}$  (freies Elektron ohne Potenzial) wird durch die einhüllende Blochfunktion  $u_{\vec{k}}(\vec{r})$  moduliert. In  $u_{\vec{k}}(\vec{r})$  spiegelt sich die Periodizität des Kristallgitters wider; es gilt  $u_{\vec{k}}(\vec{r}) = u_{\vec{k}}(\vec{r} + \vec{R})$ .

Die funktionale Abhängigkeit der Energieeigenwerte  $E_{\vec{k}} = E(\vec{k})$  wird als Dispersionsrelation und die graphische Auftragung  $E = f(\vec{k})$  als Bandstruktur bezeichnet. Der Punkt  $\vec{k} = 0$  wird  $\Gamma$ -Punkt genannt. Die Abhängigkeit der Teilchenenergie vom Wellenzahlvektor unterscheidet sich meist erheblich von der freier Elektronen (Gl. 4.2). Oft kann man aber an den Extrempunkten in der Bandstruktur eine parabolische Näherung der Dispersion vornehmen, und man erhält adäquat zu Gl. 4.2

$$E(\vec{k}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*}, \quad (4.5)$$

wobei die Masse des freien Elektrons durch die effektive Masse des Elektrons im Kristall  $m^*$  ersetzt wurde. Die effektive Masse ist sozusagen der Anpassungsparameter der Energieparabel an den realen Bandverlauf. Durch einen Analogieschluss bei Betrachtung der Bewegungsgleichung(en) eines Elektrons kann man zeigen, dass allgemein gilt:

$$(m^{*-1})_{ij} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E(\vec{k})}{\partial k_i \partial k_j}. \quad (4.6)$$

In Halbleitern wie GaAs (Zinkblendestruktur) ist das Valenzband dreifach aufgespalten in ein Band schwerer Löcher (engl. *heavy holes*, hh), ein Band leichter Löcher (*light holes*, lh) sowie ein *Split-off*-Band. Die Unterteilung in schwere und leichte Löcher rührt von der unterschiedlichen Krümmung der Bänder her (vgl. Gl. 4.6). In kubischen Materialien sind leichte und schwere Löcher am  $\Gamma$ -Punkt entartet, wohingegen das *Split-off*-Band durch die Spin-Bahn-Aufspaltung um einen Energiebetrag  $\Delta_{so}$  abgesenkt ist.

Die Beschränkung der Bewegungsfreiheit der Elektronen im Kristall in ein, zwei oder drei Dimensionen durch entsprechende Potenzialbarrieren führt zu neuen Quantisierungseigenschaften der Elektronen. Je nach Anzahl der verbleibenden Freiheitsgrade unterscheidet man Quantenfilme (engl. *quantum well*, QW,

<sup>1</sup>Für die Bewegung von Löchern gelten die gleichen Beziehungen, nur dass die Masse  $m_e$  durch  $m_h$  und die Ladung  $q_e$  durch  $q_h = -q_e$  ersetzt werden muss.



2-dimensional), Quantendrähte (engl. *quantum wire*, QWR, 1-dimensional) und Quantenpunkte (engl. *quantum dot*, QD, 0-dimensional).

Niederdimensionale Systeme können mit Hilfe von Halbleitermaterialien unterschiedlicher Bandlücke realisiert werden. Ein Quantenfilm entsteht dadurch, dass in einer Heterostruktur ein schmallückiger Halbleiter zwischen zwei breitlückigen eingebaut ist: HL1–HL2–HL1 mit  $E_{g1} > E_{g2}$ . Solche Strukturen wurden zuerst von Dingle *et al.* realisiert [54]. Um eine Quantisierung zu erreichen, muss die Dicke  $L_z$  des Quantenfilms in der Größenordnung der de Broglie-Wellenlänge der Ladungsträger liegen. Zweidimensionale Ladungsträgersysteme können sich aber auch an der Grenzfläche zweier verschiedener Halbleiter ausbilden (sog. Inversionsschichten mit asymmetrischem, dreieckigem Potenzial).

Zur Herstellung von Quantendrähten des Materialsystems GaAs/(Al,Ga)As bedient man sich oft der Technologie des Überwachsens von strukturierten Substraten mit Quantenfilmen. Zum Beispiel entsteht im Scheitel eines V-förmigen Grabens eine Verdickung des Quantenfilms auf Grund der langsameren Wachstumsgeschwindigkeit an den Seitenflächen [55]. Eine weitere Möglichkeit ist das Wachsen des Quantenfilms über in das Substrat geätzte Stufen, wobei auch hier Unterschiede in der Wachstumsgeschwindigkeit ausgenutzt werden [6]. In Abschnitt 4.3 wird auf die Einzelheiten dieser speziellen Variante eingegangen, da entsprechende Systeme im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurden.

Quantenpunkte können in epitaktischen Schichten entstehen, wenn die Verspannung des Materials zu einem 3-dimensionalen Inselwachstum führt, dem Stranski-Krastanov-Modus [56]. Die entstehenden pyramidalen Strukturen bilden ein quasi 3-dimensionales Einschlusspotenzial für die Elektronen. Auch Wachstumsinseln in Quantenfilmen können als Quantenpunkte angesehen werden, wenn ihr Einschlusspotenzial hoch genug ist.

Bei der Berechnung der Wellenfunktionen in Heterostrukturen wird in den meisten Fällen von der Methode der Effektivmassennäherung Gebrauch gemacht. Darunter ist zu verstehen, dass nur die Zustände im Minimum des Leitungs- oder Maximum des Valenzbandes betrachtet werden. Die effektive Masse, die die Ladungsträger in diesen Extrempunkten nach Gl. 4.6 besitzen, wird damit in dem jeweiligen Halbleitermaterial als konstant angenommen. Mit den jeweiligen Leitungs- und Valenzbandkanten wird der Potenzialverlauf in der Struktur gekennzeichnet.

Definiert  $z$  die Richtung der Quantisierung in einem Quantenfilm, so hat die Wellenfunktion des Elektrons die Form

$$\psi_{\vec{k},n_z}^{2D}(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{L_x L_y}} e^{ik_x x} e^{ik_y y} \phi_{n_z}(z) u_{\vec{k}}(\vec{r}). \quad (4.7)$$

Der abseparierte Anteil  $\phi_{n_z}(z)$  (Enveloppenfunktion) stellt eine stehende Welle zwischen den Potenzialbarrieren mit einem diskreten Energiespektrum dar:

$$E_{n_z}^{2D}(k_x, k_y) = \frac{\hbar^2(k_x^2 + k_y^2)}{2m^*} + E_{n_z}. \quad (4.8)$$

Die Energieeigenwerte  $E_{n_z}$  geben die Aufspaltung der Bänder im Quantenfilm in sog. Subbänder an. Für Quantendrahtstrukturen gilt bei Quantisierung in  $z$ - und  $y$ -Richtung

$$\begin{aligned}\psi_{\vec{k},n_y,n_z}^{1D}(\vec{r}) &= \frac{1}{\sqrt{L_x}} e^{ik_x x} \chi_{n_y}(y) \phi_{n_z}(z) u_{\vec{k}}(\vec{r}), \\ E_{n_y,n_z}^{1D}(k_x) &= \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m^*} + E_{n_y} + E_{n_z},\end{aligned}\tag{4.9}$$

und für Quantenpunktstrukturen

$$\begin{aligned}\psi_{n_x,n_y,n_z}^{0D}(\vec{r}) &= \eta_{n_x}(x) \chi_{n_y}(y) \phi_{n_z}(z), \\ E_{n_x,n_y,n_z}^{0D} &= E_{n_x} + E_{n_y} + E_{n_z}.\end{aligned}\tag{4.10}$$

Bei Quantenpunkten liegt anstelle von Subbändern ein Spektrum von diskreten Energieniveaus vor (künstliches Atom').

Die Quantisierungsenergien lassen sich für den einfachen Fall eines rechteckigen Potenzialverlaufs mit unendlich hohen Barrieren (Randbedingungen:  $\psi \equiv 0$ ;  $\psi' \equiv 0$ ) wie folgt angeben:

$$E_{n_i} = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m^* L_i^2} n_i^2, \quad i = x, y, z.\tag{4.11}$$

Der reale Fall endlich hoher Potenzialbarrieren hat zur Folge, dass sich die Wellenfunktionen in die Barriere hinein erstrecken. Die Berechnung der Energieniveaus wird demnach auch abhängig von den Materialeigenschaften der Barriere (z. B. von der effektiven Masse, die die Elektronen darin besitzen). Im Realfall sind die Energien  $E_{n_i}$  geringer als durch Gl. 4.11 beschrieben.

### 4.1.2 Exzitonen

Die Anregung eines Elektrons aus dem Valenzband eines Halbleiters in das Leitungsband lässt ein Defektelektron oder kurz Loch im Valenzband zurück. Da das Loch eine positive Ladung trägt, unterliegen beide einer attraktiven Wechselwirkung. In diesem attraktiven Potenzial können sich gebundene Zustände bilden. Derartige Zustände werden Exzitonen genannt<sup>2</sup>.

Die Beschreibung eines Exzitons kann in Analogie mit dem quantenmechanischen Problem des Wasserstoffatoms erfolgen. Die Schrödingergleichung zur Beschreibung der Bindungszustände,

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m_{eh}} \nabla^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_b r} \right) \phi(\vec{r}) = (E - E_g) \phi(\vec{r}),\tag{4.12}$$

berücksichtigt, dass sich das Exziton im Festkörper mit einer gewissen Dielektrizitätskonstante  $\epsilon_b$  und einer Bandlücke  $E_g$  befindet.  $\vec{r}$  bezeichnet die Relativkoordinate,  $m_{eh}$  ist die reduzierte effektive Masse des Elektron-Loch-Paares. In

<sup>2</sup>Grundlegende Arbeiten zur Elektron-Loch-Wechselwirkung wurden von Frenkel [57] und Peierls [58] geleistet. Der Begriff *Exziton* wurde von Frenkel 1936 geprägt [59].

Analogie zum Wasserstoffatom findet man die Energieeigenwerte

$$E_n = E_g - \frac{\mathcal{R}_{eh}}{n^2}, \quad n = 1, 2, \dots, \infty, \quad \text{mit } \mathcal{R}_{eh} = \frac{m_{eh}}{2} \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_b\hbar} \right)^2. \quad (4.13)$$

Der Radius eines Exzitons,

$$a_{eh} = \frac{4\pi\epsilon_0\epsilon_b\hbar^2}{m_{eh}e^2}, \quad (4.14)$$

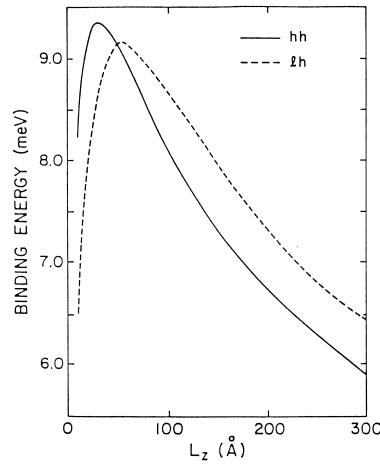
kann als skaliertes Bohr-Radius  $a_{eh} = a_B \frac{m_0}{m_{eh}} \epsilon_b = \frac{m_0}{m_{eh}} \epsilon_b \times 0,05 \text{ nm}$  betrachtet werden. Je nach Größe des Exzitonradius unterscheidet man Frenkel-Exzitonen, deren Ausdehnung kleiner ist als die Gitterkonstante, und Wannier-Mott-Exzitonen, die sich über mehrere Gitterkonstanten erstrecken. Frenkel-Exzitonen werden z. B. bei angeregten Zuständen im Ionenkristall gebildet. Dagegen sind Wannier-Mott-Exzitonen eine typische Erscheinung in Halbleitern. In GaAs mit  $\epsilon_b = 13,2$ , Masse des Elektrons am  $\Gamma$ -Punkt  $m_e = 0,067m_0$  und Masse des Lochs  $m_{hh} = 0,5m_0$  sind  $\mathcal{R}_{eh} \approx 5 \text{ meV}$ ,  $a_{eh} \approx 10 \text{ nm}$ . Wegen ihrer geringen Bindungsenergie sind Exzitonen in GaAs nur bei tiefen Temperaturen nachweisbar. Das ändert sich jedoch drastisch für den Fall niederdimensionaler Systeme. Zum Beispiel ist der Grundzustand für den Fall eines „zweidimensionalen Wasserstoffatoms“ auf Grund  $E_n^{2D} = E_g - \mathcal{R}_{eh}/(n - \frac{1}{2})^2$  um Faktor 4 größer ( $n = 1$ ); der Bohrradius ist  $a_B^{2D} = 0,5 \times a_B^{3D}$ .

Für Exzitonen in einem Quantenfilm kann man zeigen [60], dass die Lösungen der Gl. 4.12 einen exponentiellen Anteil  $\psi \sim \exp(-|\sqrt{\rho^2 + (z_e - z_h)^2}|)$  besitzen, wobei  $\rho$  und  $(z_e - z_h)$  den Abstand zwischen Elektron und Loch in der Filmebene bzw. senkrecht dazu darstellen. Dadurch sind die Energieeigenwerte exponentiell abhängig von der Ausdehnung des Exzitons in  $z$ -Richtung bzw. der Dicke  $L_z$  des Quantenfilms. Für den Fall eines vollständigen Confinements (unendlich hohe Potenzialbarrieren), bei dem die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Exzitons ausschließlich auf den Quantenfilm begrenzt ist, ist die Bindungsenergie im Grundzustand für  $L_z \rightarrow 0$   $E_1^{2D} = 4 \times \mathcal{R}_{eh}^{3D}$  und fällt für  $L_z \rightarrow \infty$  exponentiell auf den Wert des Quantenfilmmaterials  $E_1 = \mathcal{R}_{eh}^{3D}$ . In der Realität sind die Potenzialbarrieren jedoch nur endlich hoch, und die Wellenfunktionen dringen in die Barriere ein. Die Grundzustandsenergie besitzt ein Maximum, bevor es für  $L_z \rightarrow 0$  auf den Wert  $E_1 = (\mathcal{R}_{eh}^{3D})_{\text{barr}}$  des Barrierenmaterials abfällt: das Exziton wird „in die Barriere gedrückt“. In Abb. 4.1 ist der Verlauf der Grundzustandsenergie für den Fall eines (Al,Ga)As/GaAs-Quantenfilms mit einem Al-Gehalt von 30% dargestellt.

### 4.1.3 Absorption und Rekombination

Die optische Anregung von Elektron-Loch-Paaren im Halbleitermaterial ist durch den Absorptionskoeffizienten  $\alpha(h\nu)$  der Struktur bestimmt. Mit dem elektrischen Dipoloperator  $\vec{\mathcal{E}} \cdot \vec{p}$  gilt

$$\alpha(h\nu) \propto | \langle \psi_f | \vec{\mathcal{E}} \cdot \vec{p} | \psi_i \rangle |^2 [h\nu - (E_g + E_n^{dD})]^{\frac{d-2}{2}} \Theta[h\nu - (E_g + E_n^{dD})]. \quad (4.15)$$



**Abbildung 4.1:** Exziton-Bindungsenergie in einem GaAs-Quantenfilm mit Barrieren aus  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$  als Funktion der Filmdicke  $L$ , dargestellt für die Bindung des Elektrons mit einem schweren (hh) und einem leichten (lh) Loch. Aus [61].

Optische Übergänge in Halbleiterstrukturen sind demnach abhängig vom Übergangsmatrixelement  $\langle \psi_f | \vec{\mathcal{E}} \cdot \vec{p} | \psi_i \rangle$ , welches die Auswahlregeln bestimmt, der Dimensionalität  $d$  des Systems und der Energielücke  $E_g$ . Die Abhängigkeit 4.15 berücksichtigt außerdem die energetische Lage  $E_n^{dD}$  der Subbänder. Die Stufenfunktion  $\Theta$  beschreibt den Einsatz der Absorption, wenn die Photonenenergie den Wert  $h\nu = E_g + E_n^{dD}$  erreicht hat. Desweiteren ist der Absorptionskoeffizient von der kombinierten Zustandsdichte  $[h\nu - (E_g + E_n^{dD})]^{\frac{d-2}{2}}$  abhängig.

Durch Variation der Wellenlänge des eingestrahlteten Lichtes lassen sich das Absorptionsspektrum einer Halbleiterstruktur und damit Informationen über die elektronischen Eigenschaften des Materials gewinnen. Die Photonenenergie  $h\nu = E_g$  bestimmt die Lage der sog. Absorptionskante. Im Absorptionsspektrum eines Halbleiters machen sich Exzitonen durch Maxima bemerkbar, die der Absorptionskante vorgelagert sind. Die Anregung von Elektronen aus dem Valenz- in das Leitungsband des Halbleiters sowie der inverse Prozess, die Rekombination eines Elektrons aus dem Leitungsband mit einem Loch des Valenzbandes, kann durch direkte Übergänge mit  $\vec{k}_i - \vec{k}_f = 0$  oder indirekte Übergänge mit  $\vec{k}_i - \vec{k}_f = \vec{K}$  erfolgen. Der notwendige Impulsübertrag  $\vec{K}$  für indirekte Übergänge kann z. B. von Phononen herrühren. Allerdings ist die Übergangsrate dadurch wesentlich geringer als in direkten Halbleitern. Die Rekombination eines Elektrons aus dem Leitungsband mit einem Loch im Valenzband kann über strahlende oder nicht-strahlende Kanäle ablaufen. Strahlende Übergänge sind durch die Emission eines Lichtquants  $h\nu$  charakterisiert. Die Rekombinationsrate  $R_{sp}$  der spontanen Emission kann in Beziehung zum Absorptionskoeffizienten  $\alpha(h\nu)$  gesetzt werden [62]:

$$R_{sp} \propto G(h\nu) \alpha(h\nu) \frac{f(E_c)[1 - f(E_v)]}{f(E_v) - f(E_c)}. \quad (4.16)$$

Hierbei bezeichnet  $G(h\nu)$  die Zustandsdichte der Photonen und  $f(E_{c,v})$  die Beset-

zungswahrscheinlichkeit der Zustände im Valenz- und Leitungsband nach der Fermi-Verteilung. Die Rekombinationsrate ist nach Beziehung 4.15 ebenfalls vom Matricelement des Dipoloperators  $|\langle \psi_f | \vec{\mathcal{E}} \cdot \vec{p} | \psi_i \rangle|^2$  mit den entsprechenden Auswahlregeln abhängig.

Zwischen Anregung und Zerfall eines Elektron-Loch-Paares durch Rekombination laufen die Prozesse der Thermalisierung, d. h. die schrittweise Relaxation der mit  $h\nu > E_g$  angeregten Ladungsträger in die Zustände an den Bandkanten, und der Diffusion der Ladungsträger ab. Die Thermalisierung kann durch einen 3-Stufen-Prozess erklärt werden [63]. Beginnend im Zustand großer kinetischer Energie (*hot carriers*) wird zunächst ein Dephasierungsprozess durchlaufen, der die kohärente Phasenbeziehung zwischen Elektron und Loch zerstört. Durch Wechselwirkung der angeregten Ladungsträger untereinander relaxieren sie innerhalb von einigen hundert Femtosekunden in ein Regime heißer Ladungsträger, in welchem die Verteilungen der Ladungsträger durch eine Temperatur größer als die des Gitters gekennzeichnet ist. In der zweiten Stufe kühlen die Ladungsträger durch Emission optischer Phononen weiter ab. Dieser Prozess geschieht innerhalb von etwa 100 ps [64], bis die dritte Stufe einsetzt, in der sich die Ladungsträger durch Emission von akustischen Phononen auf Gittertemperatur abkühlen. Der letzte Prozess findet auf einer Zeitskala von einigen Nanosekunden statt und konkurriert mit der nun einsetzenden Rekombination von Elektronen und Löchern.

In der Photolumineszenzspektroskopie unterliegen die angeregten Elektronen und Löcher von Anfang an einer gegenseitigen Wechselwirkung. Dagegen beruht das Prinzip der Elektrolumineszenz (EL) auf der unabhängigen Injektion von Elektronen und Löchern in die Halbleiterstruktur durch Anlegen eines äußeren elektrischen Feldes. Die EL läuft ähnlich den oben beschriebenen Prozessen ab. Beginnend mit der Injektion von Ladungsträgern durch das angelegte Feld, folgt der Transport der Ladungsträger in eine Zone, in der sie letztlich (strahlend) rekombinieren können [65].

#### 4.1.4 Diffusion

Im Anschluss an die Thermalisierung kommt es zur Diffusion der angeregten Ladungsträger im Halbleiter. Maßgeblich ist hierbei die Lebensdauer  $\tau_{\text{tot}}$  zwischen Anregung und Rekombination, die sich über

$$\frac{1}{\tau_{\text{tot}}} = \frac{1}{\tau_{nr}} + \frac{1}{\tau_r} \quad (4.17)$$

aus der strahlenden und nichtstrahlenden Lebensdauer  $\tau_r$  bzw.  $\tau_{nr}$  zusammensetzt. Die weiteren Betrachtungen erfolgen unter der Annahme freier (Minoritäts-)Ladungsträger in einer sog. hydrodynamischen Beschreibungsweise. Eine räumlich inhomogene Verteilung  $n_i(\vec{r}, t)$  von Überschussladungsträgern mit der Ladung  $q$  führt zu einem Diffusionsstrom pro Flächeneinheit

$$\vec{j}_{\text{diff}}(\vec{r}, t) = -D_i q \nabla n_i(\vec{r}, t), \quad (4.18)$$

mit dem entsprechenden Diffusionskoeffizienten  $D_i$ . Weiterhin gilt die Kontinuitätsgleichung

$$\nabla \cdot \vec{j}_{\text{diff}}(\vec{r}, t) + q \frac{\partial n_i(\vec{r}, t)}{\partial t} = 0, \quad (4.19)$$

und unter Berücksichtigung von Anregung  $G(\vec{r}, t)$  von Ladungsträgern und ihrer Lebensdauer  $\tau_{\text{tot}}$  erhält man die Ratengleichung

$$\frac{\partial n_i(\vec{r}, t)}{\partial t} = D_i \Delta n_i(\vec{r}, t) - \frac{n_i(\vec{r}, t)}{\tau_{\text{tot}}} + G(\vec{r}, t). \quad (4.20)$$

Für den stationären Fall in einer Dimension  $\partial n_i(x, t)/\partial t = 0$  und unter der Annahme, dass Ladungsträger nur in  $x = 0$  generiert werden, ergibt sich folgende Gleichung

$$D_i \frac{d^2 n_i(x)}{dx^2} - \frac{n_i(x)}{\tau_{\text{tot}}} = 0, \quad (4.21)$$

mit der Lösung

$$n_i(x) = n_i(0) e^{-x/L_i}, \quad L_i = \sqrt{D_i \tau_{\text{tot}}}. \quad (4.22)$$

Die charakteristische Länge  $L_i$  wird als Diffusionslänge bezeichnet.

Unter zusätzlichem Einfluss eines äußeren elektrischen Feldes  $\vec{\mathcal{E}}$  entsteht ein Driftstrom  $\vec{j}_{\text{drift}}$  der Ladungsträger (Flächenstromdichte). Die Abhängigkeit des Driftstroms vom elektrischen Feld wird durch die Beweglichkeit  $\mu_i$  ausgedrückt:

$$\vec{j}_{\text{drift}}(\vec{r}, t) = q n_i(\vec{r}, t) \mu_i \vec{\mathcal{E}}, \quad (4.23)$$

Die Gleichgewichtsbedingung  $\vec{j}_{\text{drift}}(\vec{r}, t) = \vec{j}_{\text{diff}}(\vec{r}, t)$  ergibt

$$n_i(\vec{r}, t) \mu_i \vec{\mathcal{E}} - D_i q \nabla n_i(\vec{r}, t) = 0. \quad (4.24)$$

Aus dieser Gleichung kann man die Einsteinbeziehung ableiten, die die Diffusionskonstante  $D_i$  mit der Beweglichkeit  $\mu_i$  und der thermischen Energie  $k_B T$  der Ladungsträger in Zusammenhang setzt:

$$q D_i = \mu_i k_B T. \quad (4.25)$$

Demnach lässt sich die Diffusionslänge über die Beweglichkeit, die Temperatur und die Lebensdauer ausdrücken:

$$L_i = \sqrt{\frac{\mu_i \tau_{\text{tot}} k_B T}{q}}. \quad (4.26)$$

## 4.2 Quantenfilme

### 4.2.1 Motivation

Halbleiterheterostrukturen auf der Materialbasis von GaAs und AlAs gehören zu den Standardkombinationen bei der Realisierung von niederdimensionalen



Strukturen. Ein wesentlicher Grund dafür ist die geringe Gitterfehlانpassung zwischen GaAs und AlAs. Damit ist ein stabiles, spannungsfreies Wachstum durch Molekularstrahlepitaxie (MBE) möglich. In diesem Abschnitt stehen einzelne GaAs-Quantenfilme im Mittelpunkt der Untersuchungen, die auf GaAs(001)-Substraten mit einer GaAs/AlAs-Übergitterbarriere gewachsen wurden.

Hey *et al.* [5] haben in der Vergangenheit den Einfluss der Wachstumsbedingungen auf die Oberflächenmorphologie und deren Zusammenhang mit den elektronischen Eigenschaften des Quantenfilms mittels Rasterkraftmikroskopie (AFM) und  $\mu$ -PL untersucht. Der Probenaufbau bestand aus einem 16 Monolagen (ML) breiten GaAs-Quantenfilm mit einer GaAs/AlAs-Übergitterbarriere aus periodischen Wiederholungen von 8 ML GaAs<sup>3</sup> und 4 ML AlAs<sup>4</sup> (engl. *short period superlattice*, SPSL). In der MBE wurden in systematischer Weise die Wachstumstemperatur und das Flussverhältnis (engl. *beam equivalent pressure*, BEP) von As<sub>4</sub> gegenüber Ga variiert. Die Wachstumsgeschwindigkeit betrug konstant 310 nmh<sup>-1</sup>. Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben sind besonders die Ergebnisse für Substrate mit einer äußerst geringen Verkipfung  $\alpha = 0^\circ \pm (0,03 \text{ bis } 0,05)^\circ$  aus [5] interessant. Bei Substrattemperaturen von  $T_s = 550 - 580^\circ\text{C}$  sowie As<sub>4</sub>/Ga-BEP = 10 konnte zweidimensionales Inselwachstum (engl. *two-dimensional island nucleation mode*, 2DN) erreicht werden, während höhere Temperaturen ( $T_s \geq 610^\circ\text{C}$ ) ein Stufenflusswachstum (engl. *step flow*, SF) hervorbringen. Das Lagenwachstum (zweidimensionales Wachstum, 2D) des epitaktischen Materials hängt entscheidend von der Kinetik der Adatome auf der Oberfläche des Substrates ab. Nicht bzw. nur leicht verkippte GaAs-Substrate weisen eine Oberflächenstruktur auf, die durch breite Terrassen gekennzeichnet ist. Ist die Diffusionslänge der Adatome größer als die Breite der Terrassen, so können sie leicht zu den Stufen gelangen. Um eine Stufe hinabzufließen, muss die sog. Ehrlich-Schwöbel-Barriere überwunden werden [66]. Reicht die kinetische Energie der Teilchen dazu aus, so gelangen sie auf die nächst tiefer gelegene Terrasse und lagern sich an die Stufe an. Dieser Prozess führt insgesamt zu einer konstanten lateralen Vorwärtsbewegung der Terrassenstufen (SF). Ist die kinetische Energie der Teilchen aufgrund einer niedrigeren Substrattemperatur zu klein, um einen Stufenfluss zu erzeugen, bilden sich auf den Terrassen Kondensationskeime, an die sich die Adatome bevorzugt anlagern (2DN). Idealerweise geht der 2DN-Modus so vonstatten, dass erst eine Monolage vollständig geschlossen wird, bevor die folgende zu wachsen beginnt. In der Realität allerdings setzt das Wachstum der folgenden Lage schon ein, bevor die darunterliegende vollständig geschlossen wurde. Es können aber auch mehrere Lagen an dem Prozess beteiligt sein, d. h. gleichzeitig wachsen.

Das weitere Interesse in diesem Abschnitt gilt den Quantenfilmproben, die sich durch epitaktisches Wachstum im 2DN-Modus auszeichnen. Wird das Wachstum für eine kurze Zeit ( $\sim 100 \text{ sec}$ ) unterbrochen, so kommt es wegen der ungestörten Migration der Adatome auf der Oberfläche zur selbständigen Bildung

<sup>3</sup>Die Gitterkonstante von GaAs beträgt bei 300 K  $a = 5,65 \text{ \AA} = 2 \text{ ML}$ .

<sup>4</sup>Die Gitterkonstante von AlAs beträgt bei 300 K  $a = 5,66 \text{ \AA} = 2 \text{ ML}$ .



großflächiger Inseln von der Höhe einer Monolage. Dieser Prozess kann bei der Herstellung von Quantenfilmstrukturen dahingehend ausgenutzt werden, dass sich an den Grenzflächen zwischen Barriere und Quantenfilm Höhenfluktuationen von nur einer Monolage pro Grenzfläche einstellen. Im Idealfall entstehen Inseln atomar glatter Grenzflächen mit einer lateralen Ausdehnung, die ein Vielfaches des Exzitonenradius beträgt. Dies führt zu einem qualitativ unterschiedlichen PL-Spektrum gegenüber rauen Grenzflächen.

In früheren Arbeiten wurde der Einfluss der wachstumsbedingten Dickenfluktuationen auf die spektrale und laterale Intensitätsverteilung der Lumineszenz in GaAs-Quantenfilmen mittels orts aufgelöster Kathodolumineszenz (CL) untersucht [67]. In der CL wird die Ortsauflösung durch das Anregungsvolumen der Sekundärelektronen und die Diffusionslänge der angeregten Ladungsträger bestimmt. Der Elektronenstrahl ermöglicht mittels Sekundärelektronenmikroskopie zwar auch eine Abbildung der Topographie der Probenoberfläche, jedoch ist die Interpretation des Kontrastes nicht immer eindeutig. Hier greifen die Vorteile des SNOM, mit dem eine eindeutige Abbildung der Topographie mit einer  $z$ -Auflösung im Subnanometerbereich (siehe Kap. 3) möglich ist. Zudem im Illuminations-/Kollektionsmodus eine hohe laterale Auflösung der Spektroskopie erreicht, so dass die elektronischen Zustände einzelner Wachstumsinseln untersucht werden können.

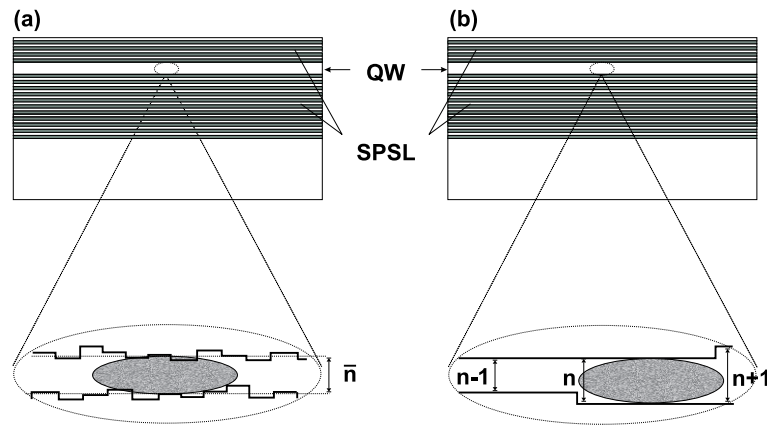
### 4.2.2 Probenaufbau

Für die in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Untersuchungen an GaAs-Quantenfilmen wurden zwei Proben ausgewählt, die sich im Prinzip lediglich durch die Morphologie der Quantenfilm-Grenzfläche unterscheiden. Der Aufbau der Proben ist in Abb. 4.2 illustriert. Mit Probe Nr. 1<sup>5</sup> wurde ein 5,50 nm dicker GaAs-Quantenfilm ohne Wachstumsunterbrechung hergestellt. Die Vergleichsprobe Nr. 2<sup>6</sup> bestand aus einem 5,33 nm dicken Quantenfilm, dessen Grenzflächen sich durch die oben beschriebenen Monolagenfluktuationen auszeichneten. Die Strukturen wurden auf  $(0 \pm 0, 1)^\circ$  verkipptem, semiisolierendem (SI) GaAs(001)-Substrat auf einer 1  $\mu\text{m}$  GaAs-Pufferschicht bei  $T_s = 580^\circ\text{C}$  und einer Wachstumsrate von 400  $\text{nmh}^{-1}$  gewachsen. Die substratseitige Barriere bestand aus 73 nm  $\text{Al}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$  mit einem anschließenden Übergitter bestehend aus 20 Perioden 2,55 nm GaAs/1,13 nm AlAs. Die Barriere der Deckschicht bestand aus 4 Perioden 2,55 nm GaAs/1,13 nm AlAs mit Abschluss durch eine 12 nm  $\text{Al}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ -Schicht sowie eine 3,3 nm dicke GaAs-Schicht (*cap layer*).

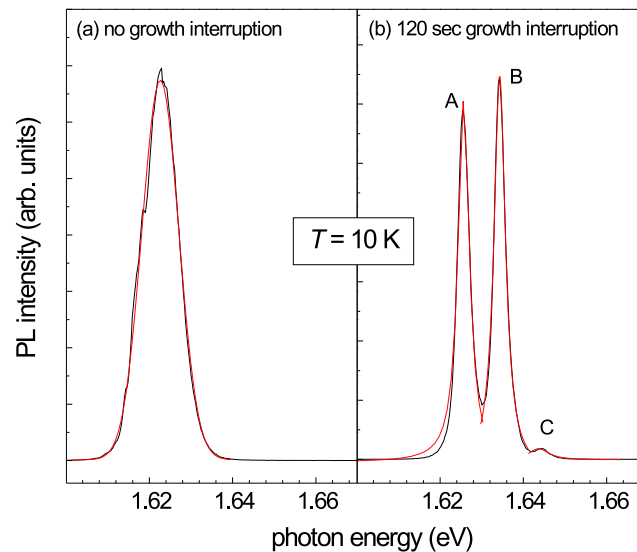
Da das Inselwachstum bei GaAs besonders ausgeprägt ist, wurde an Probe Nr. 2 nach dem Wachstum der letzten GaAs-Schicht der substratseitigen Übergitterbarriere eine Unterbrechung von  $t = 120$  s vorgenommen. Die daran anschließende 1,13 nm AlAs-Schicht sollte die Inselstrukturen nicht zerstören. Nach Abschluss der 5,50 nm GaAs-QW-Schicht ist ein weiteres Mal das Wachstum für  $t = 120$  s unterbrochen worden, bevor die obere Übergitterbarriere aufgetragen wurde.

<sup>5</sup>M4.1082

<sup>6</sup>M4.1083



**Abbildung 4.2:** Aufbau der GaAs-Quantenfilmproben mit GaAs/AlAs-Übergitterbarrieren. (a) Probe Nr. 1 wurde ohne Wachstumsunterbrechung hergestellt. Der Exzitonradius ist größer als die räumliche Korrelationslänge des Potentials und mittelt daher über Mikrorauigkeit hinweg. (b) Zum Vergleich wurde Probe Nr. 2 mit einer Wachstumsunterbrechung von  $t = 120$  s an beiden Grenzflächen des Quantenfilms hergestellt. Dieser Prozess führt zu drei nominellen Dicken mit  $n - 1$ ,  $n$  und  $n + 1$  Monolagen GaAs. Der Exzitonradius ist kleiner als die laterale Ausdehnung der Potentialmulden.



**Abbildung 4.3:**  $\mu$ -PL-Übersichtsspektren der untersuchten Quantenfilm-Proben. (a) Gaußförmige Verbreiterung der PL des GaAs-Quantenfilms mit rauen Grenzflächen (Probe Nr.1). (b) Aufspaltung der PL durch Monolagenfluktuationen an den Grenzflächen des Quantenfilms mit den drei nominellen Dicken  $n + 1$  ML (A),  $n$  ML (B) und  $n - 1$  ML (C) mit lorentzförmiger Verbreiterung der Emissionsmaxima (Probe Nr.2).

In Abb. 4.3 sind Übersichtsspektren der Proben einander gegenübergestellt, die mittels  $\mu$ -PL gemessen wurden. Bei Abwesenheit großer, monoatomar glatter Inseln [Probe Nr.1, Abb. 4.3(a)] ist die PL-Emission durch ein Emissionsmaximum

gekennzeichnet. Die PL ist inhomogen verbreitert und kann mit einem Gauß-Profil angepasst werden. Die Linienform spiegelt die statistische Fluktuation der Dicke  $L_z$  des Quantenfilms wider. Das lässt sich sofort anhand des einfachen Beispiels eines Quantenfilms mit unendlich hohen Potentialbarrieren einsehen. Aus Gl. 4.11 wird mit  $n = 1$  das totale Differential

$$dE = \frac{\pi \hbar^2}{2m^* L_z^3} dL_z. \quad (4.27)$$

Wenn angenommen wird, dass das Höhenprofil der Grenzflächen (z-Richtung) statistisch fluktuiert, dann wird  $L_z$  eine gaußförmige Verteilung annehmen. Über Gl. 4.27 überträgt sich dies auf die Energieverteilung und damit die Linienform der PL [68,69].

Dagegen ist die PL-Emission eines Quantenfilms mit atomar glatten Grenzflächen homogen verbreitert. Die statistische Fluktuation von  $L_z$  ist hier idealerweise null. Die Linienbreite der PL ist durch die Lebensdauer der angeregten Ladungsträger bestimmt [70]. Im Falle der drei nominellen Emissionslinien der Probe Nr.2 liegt eine solche lorentzförmige Verbreiterung vor [Abb. 4.3(b)]. Die drei Emissionsmaxima liegen energetisch bei  $E = 1,626$  (A),  $1,634$  (B) und  $1,644$  eV (C).

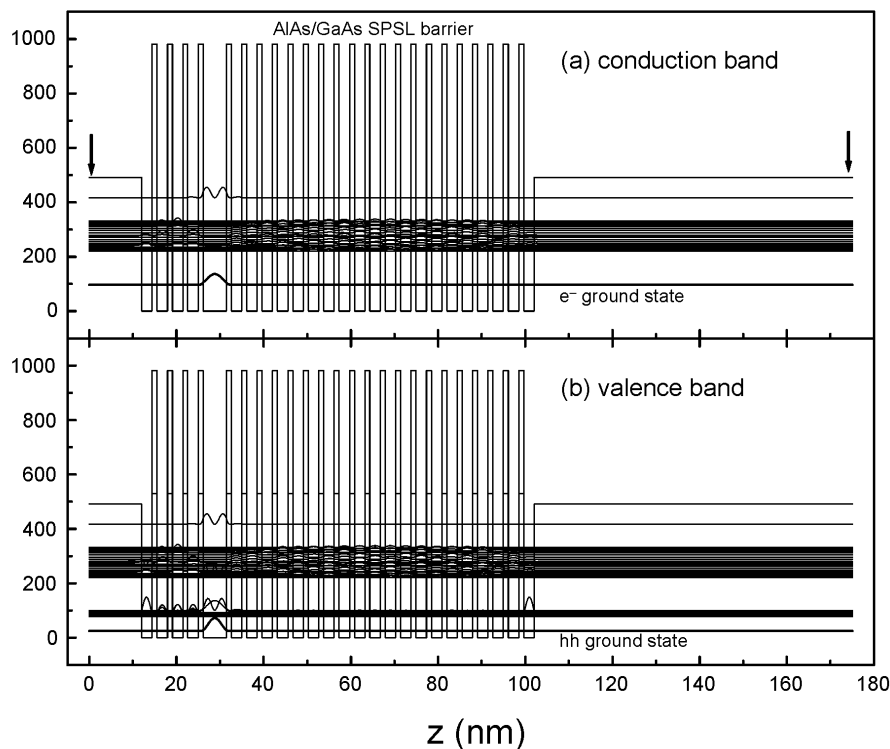
Die Leitungs- und Valenzbandzustände der Quantenfilmstrukturen wurden numerisch mit einem Programm berechnet, das auf der Basis der Methode der Endlichen Elemente (FEM) arbeitet [71]. In Abb. 4.4 sind die Ergebnisse dieser Berechnungen für die gesamte QW/SPSL-Struktur graphisch dargestellt, wobei die Wellenfunktionen der Elektronen bzw. Löcher entsprechend der Lage des zugehörigen Energieniveaus eingezeichnet wurden. Der Grundzustand im Leitungsband ist für Probe Nr. 1  $E_e = 92,9$  meV und für den Grundzustand der schweren Löcher im Valenzband  $E_{hh} = 23,7$  meV (jeweils von der Bandkante gemessen). Die Berechnung der Energie der PL-Emission erfolgt anhand von

$$h\nu_{PL} = E_g + E_e + E_{hh} - E_b, \quad (4.28)$$

wobei  $E_b$ , die Bindungsenergie der Exzitonen, berücksichtigt werden muss. Bei  $T = 5$  K besitzt GaAs eine Bandlücke von  $E_g = 1,519$  eV. Die Exzitonenbindungsenergie beträgt in den betrachteten Quantenfilmen nach Abb. 4.1 ca. 9 meV. Mit diesen Werten ergibt sich nach Gl. 4.28 ein theoretischer Wert der PL von  $h\nu_{PL} = 1,627$  eV. Die experimentell ermittelte Linie im PL-Spektrum [Abb. 4.3 (a)] liegt bei  $h\nu_{PL} = (1,622 \pm 0,009)$  eV. Innerhalb der Halbwertsbreite der Linie stimmen die Werte der numerischen Berechnung damit überein.

Für Probe Nr. 2 wurden die Berechnungen für die drei Fälle  $n$  ML ( $n = 19$ ),  $n - 1$  ML ( $L_z = 5,05$  nm) und  $n + 1$  ML ( $L_z = 5,61$  nm) durchgeführt. Daraus wurde die Energiedifferenz für die PL in bezug auf  $n$  ML wie folgt bestimmt:  $\Delta h\nu_{n \rightarrow n-1} = 10$  meV und  $\Delta h\nu_{n \rightarrow n+1} = 9$  meV. Diese Werte liegen in guter Übereinstimmung mit den Abständen der PL-Linien in Abb. 4.3.

Die energetisch nächsthöheren Zustände liegen im Leitungs- wie auch im Valenzband in einem Miniband der Übergitterbarriere. Die Minibänder stellen damit eine Art effektive Bandkante der Barriere vergleichbar mit  $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$  als Barrierenmaterial dar.



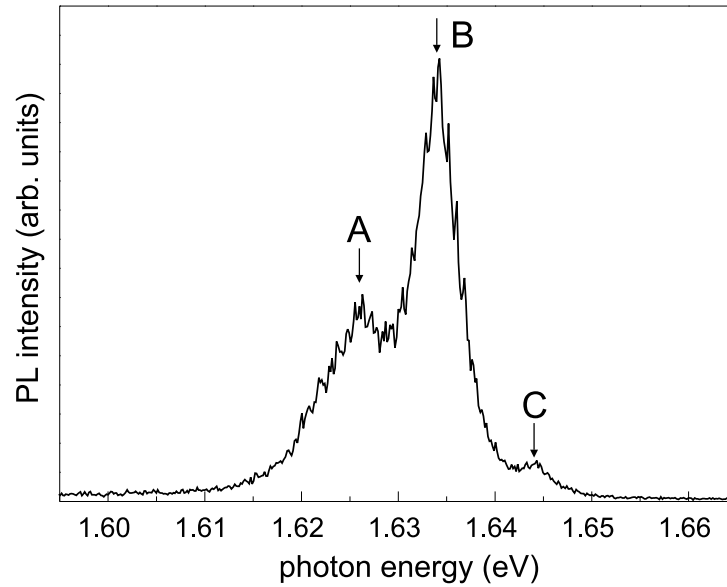
**Abbildung 4.4:** Numerische Berechnung der Energiezustände in den QW/SPSL-Strukturen (ohne *cap layer*) mit Hilfe der Finite-Elemente-Methode [71] (a) für Elektronen und (b) für schwere Löcher.

### 4.2.3 SNOM-Untersuchungen

Die Methode der optischen Nahfeldspektroskopie bietet interessante Möglichkeiten zur Untersuchung der lateralen Struktur in Quantenfilmen. Wegweisende Arbeiten hierzu sind von Hess *et al.* [72] durchgeführt worden. Durch die hohe Ortsauflösung des SNOM tritt eine exzitonische ‚Feinstruktur‘ der PL-Emission zu Tage, welche bei PL-Messungen im Fernfeld nicht auflösbar ist. Über die exzitonischen Linien im PL-Spektrum lassen sich Rückschlüsse auf Potenzialfluktuationen und damit auf die Beschaffenheit der Quantenfilm-Grenzfläche ziehen.

In Verbindung mit der hohen  $z$ -Auflösung des in Kapitel 3 vorgestellten optischen Nahfeldmikroskops ergeben sich neue, interessante Aspekte für die Anwendung dieser Technik im Bereich niederdimensionaler Halbleiterstrukturen. An den in [5] untersuchten Quantenfilmstrukturen ist eine ausgeprägte Inselstruktur der Probenoberfläche mittels AFM beobachtet worden. Daraus lässt sich für diese Systeme die Frage ableiten, inwiefern ein Zusammenhang zwischen den Topographiemerkmalen der Probenoberfläche und der Grenzflächenmorphologie des Quantenfilms besteht.

Die Messungen wurden mit einer geätzten, unbedampften Glasfaserspitze im Illuminations-/Kollektionsmodus bei tiefen Temperaturen (10 – 15 K) durchgeführt. Die Ortsauflösung ( $\approx 250$  nm) der Spitzen lag deutlich unterhalb der lateralen Ausdehnung der im AFM abgebildeten Merkmale (Inseldurchmesser



**Abbildung 4.5:** Nahfeld-PL-Spektrum von Probe Nr. 2 bei  $T = 13$  K und einer Anregungsleistung  $P_{\text{exc}} \approx 100$  nW ( $h\nu_{\text{exc}} = 1,92$  eV). Die drei PL-Linien A, B und C sind durch eine Feinstruktur gekennzeichnet.

$\approx 1\mu\text{m}$ ). Eine höhere Ortsauflösung durch Verwendung metallbedampfter Spitzen mit definierter Apertur war für die Messungen daher nicht erforderlich, zumal der geringe Transmissionsgrad dieser Spitzen sehr lange Integrationszeiten der Spektren nach sich gezogen und somit den Illuminations-/Kollektionsmodus unmöglich gemacht hätte. Da die Diffusionslänge angeregter Ladungsträger im GaAs-Quantenfilm in der Größenordnung von  $1\mu\text{m}$  liegt<sup>7</sup>, war die Wahl einer Anregungs- und Sammelkonfiguration wie des Illuminations-/Kollektionsmodus unabdingbar.

Für die optischen Nahfelduntersuchungen interessierte zunächst die räumliche Verteilung der Photolumineszenz und der Vergleich mit der Topographie bei Probe Nr. 2. Zu diesem Zwecke wurden verschiedene Stellen mehrerer Probenstücke eines Wafers bei tiefen Temperaturen untersucht. Die Vorgehensweise war die, dass zunächst eine aussagekräftige Topographieaufnahme mit der SNOM-Spitze im Scherkraftmodus aufgenommen wurde. Die Größe der Scans lag üblicherweise zwischen  $3\times 3$  und  $6\times 6\mu\text{m}^2$ . Im Anschluss wurden  $26\times 26$  Nahfeldspektren in einem äquidistanten Raster über dem Gebiet der Aufnahme gemessen. In Abb. 4.5 ist eins der Nahfeldspektren mit den drei Linien A, B und C gezeigt. Die Anregungsleistung betrug hierbei  $P_{\text{exc}} = 100$  nW bei einer Anregungsenergie  $h\nu_{\text{exc}} = 1,92$  eV. Jede der drei Hauptlinien der aufgezeichneten Spektren wurde mit einer Lorentzfunktion angepasst. Die Fläche unter der angepassten Kurve

<sup>7</sup>In einer Arbeit von Hillmer *et al.* [73] wurden für einen 5 nm GaAs/ $\text{Al}_{0,37}\text{Ga}_{0,63}\text{As}$ -Quantenfilm mit glatten Grenzflächen (2 min Wachstumsunterbrechung) eine Exzitonenbeweglichkeit  $\mu_{\text{ex}} \approx 5000\text{ cm}^2/\text{Vs}$  und eine Lebensdauer  $\tau_{\text{tot}} = 500$  ps bestimmt. Nach Gl. 4.26 bedeutet dies eine Diffusionslänge  $L \approx 0,5\mu\text{m}$  ( $T = 10$  K).

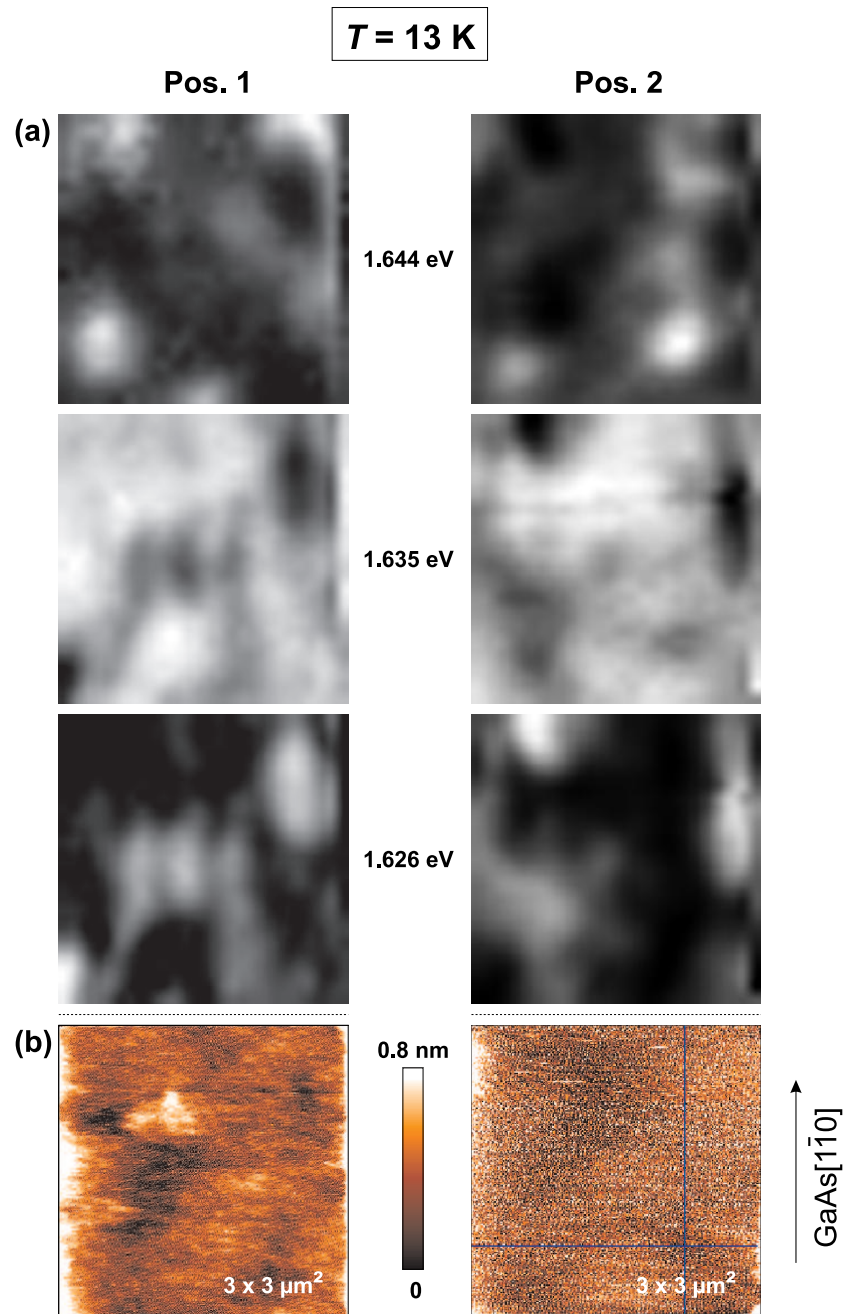
wurde als Maß für die Intensität der Emission genommen und auf die Gesamtintensität der Spektren normiert.

Die räumliche Auftragung der so gewonnenen relativen Intensitäten der drei PL-Linien ist in Abb. 4.6 zusammen mit den dazugehörigen Topographie-Bildern für zwei exemplarische Aufnahmen an Probe Nr. 2 gezeigt. Als erstes fällt auf, dass die räumlichen Verteilungen der PL-Intensitäten jeweils zueinander komplementär sind. Die mittlere Linie B (1,635 eV) ist gegenüber den anderen dominant, d. h. sie nimmt den größten Flächenanteil in den optischen Bildern ein. Sie ist in allen Spektren vertreten. Dahingegen sind in den optischen Bildern der niederenergetischen (1,626 eV) sowie der höherenergetischen Linie (1,644 eV) nur wenige Intensitätsmaxima vertreten. Diese Maxima sind von einem inselartigen Charakter. Die Durchmesser dieser Inseln kann größenordnungsmäßig mit  $1\ \mu\text{m}$  abgeschätzt werden. Die Topographieaufnahmen zeigen flache Erhebungen mit einem Höhenunterschied im Subnanometerbereich. Die laterale Ausdehnung dieser Strukturen ist von derselben Größenordnung wie die der räumlichen Lumineszenzmaxima. Jedoch kann ein direkter Zusammenhang zwischen der Oberflächenmorphologie und der Verteilung der Lumineszenzzentren nicht hergestellt werden. In Bezug auf die Form der Lumineszenzmaxima in den optischen Bildern kann festgestellt werden, dass die Inseln stärker in Richtung GaAs[1 $\bar{1}$ 0] ausgedehnt sind. Dies soll am Ende dieses Abschnittes eingehender diskutiert werden.

Zur Erklärung der Nahfeld-Aufnahmen in Abb. 4.6 kann ein einfaches Modell herangezogen werden. Aus den AFM-Aufnahmen kann man eine mittlere Anzahl (Flächendichte) der Erhebungen von  $0,3\ \mu\text{m}^{-2}$  extrahieren. Sie besitzen einen Durchmesser von etwa  $1\ \mu\text{m}$ . Mit diesen Daten wurde eine einfache Simulation der Grenzflächenmorphologie durchgeführt. Dazu wurde angenommen, dass sich ideales zweidimensionales Wachstum (2D) vollzieht, d. h. jede Monolage vollständig geschlossen wird, bevor sich die nächste bildet. Ausgehend von einer vollständig geschlossenen Monolage an der unteren Grenzfläche werden nun mit den o. g. Parametern kreisrunde Inseln gebildet und zufällig auf der Fläche verteilt. Das Wachstum wird nun mit dem Quantenfilmmaterial fortgeführt, wobei wegen des idealen 2D-Modus angenommen wird, dass sich die Inseln der unteren Grenzfläche nicht weiter vererben. An der oberen Grenzfläche wird dieselbe Prozedur der zufälligen Verteilung kleiner Inseln (gleiche Parameter) wiederholt. Man kann nun anhand der so entstandenen räumlichen Verteilung der drei nominellen Quantenfilmdicken die räumliche Intensitätsverteilung der entsprechenden PL-Linien darstellen. Abbildung 4.7 gibt ein Ergebnis dieser Simulation wieder. Zum Vergleich sind zusätzlich die realen Bilder aus Abb. 4.6 (Pos. 1) gezeigt. Aufgrund der qualitativen Übereinstimmung der simulierten und realen optischen Bilder kann festgestellt werden, dass die Größe und Anzahl der topographischen Erhebungen im Zusammenhang mit der durch Wachstumsunterbrechung bedingten Morphologie (der oberen) Grenzfläche des Quantenfilms steht. Das Verhältnis der Flächenanteile zwischen den Gebieten der drei Quantenfilmdicken beträgt etwa  $A_{n-1} : A_n : A_{n+1} = 1 : 2 : 1$ .

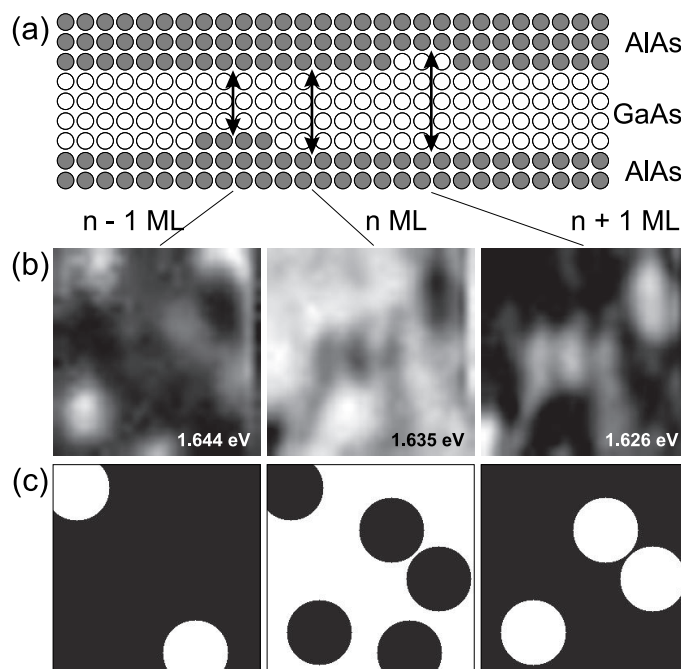
Die Thermalisierung der Ladungsträger aus den höheren in benachbarte tiefere Energieniveaus dickerer Quantenfilmgebiete wurde in der Simulation aller-





**Abbildung 4.6:** (a)  $3 \times 3 \mu\text{m}$  Nahfeld-PL-Aufnahmen der mit Wachstumsunterbrechung hergestellten Probe Nr. 2 bei tiefen Temperaturen an zwei verschiedenen Positionen. Die Bilder stellen die räumliche Verteilung der relativen Intensitäten der drei PL-Linien dar. (b) Zugehörige Topographiescans der beiden Positionen. Die optischen Bilder zeigen keine Korrelationen zur Oberflächentopographie.

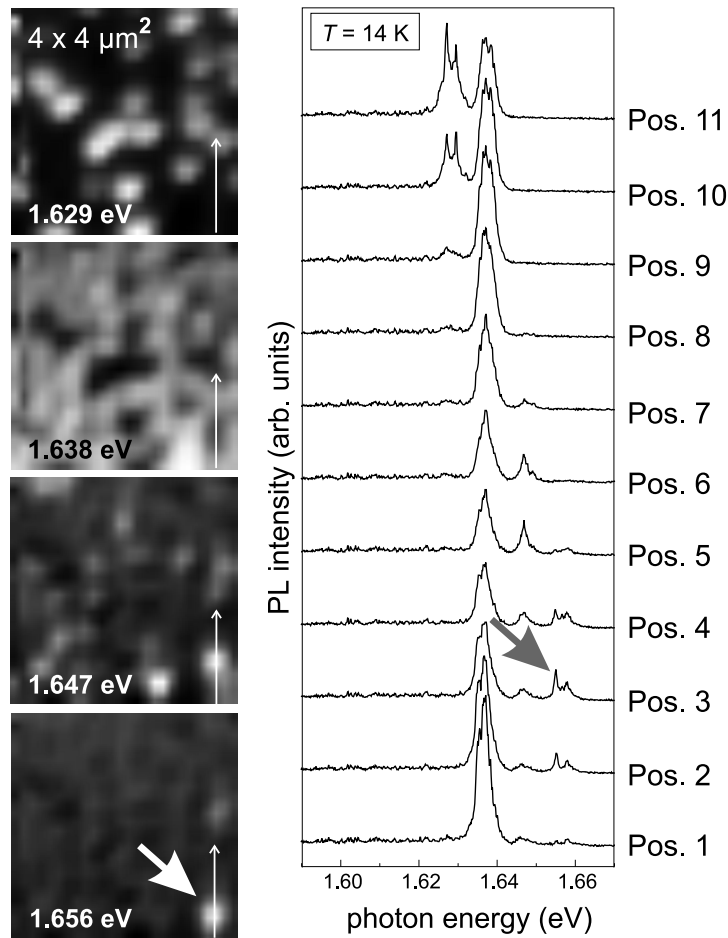




**Abbildung 4.7:** Zur Simulation der räumlichen Verteilung der PL für Probe Nr. 2. (a) Darstellung der drei möglichen Quantenfilmdicken und deren Zuordnung zu (b) den realen Nahfeldbildern aus Abb. 4.6 (Pos. 1). (c) Simulierte räumliche Intensitätsverteilung der drei PL-Linien (Inseldurchmesser  $1\ \mu\text{m}$ ; Anzahl der Inseln  $0,3\ \mu\text{m}^{-2}$ ).

dings nicht berücksichtigt. Zwar bestimmt dieser Prozess die Eigenschaften der PL-Spektren, in denen die höherenergetische Linie gegenüber den anderen beiden sehr intensitätsschwach erscheint. Da sich aber nur die relative Intensität ändert, sollte die räumliche Verteilung der Intensitätsmaxima von der Thermalisation unbeeinflusst bleiben.

In weiteren Untersuchungen konnte eine zusätzliche Monolagenaufspaltung beobachtet werden. Abbildung 4.8 zeigt eine Spektrenserie entlang einer Linie durch das Intensitätsmaximum einer vierten nominellen PL-Emission bei  $h\nu_{PL} = 1,656\ \text{eV}$  [ $(n-2)$  ML]. Das Probenstück ist dem Wafer aus einer randnäheren Position entnommen worden. Alle monolagenaufgespaltenen PL-Linien sind in diesem Probenstück zu höheren Energien verschoben. Die Aufnahmen wurden im Illuminations-/Kollektionsmodus bei tiefen Temperaturen ( $T = 14\ \text{K}$ ) mit einer Anregungsleistung von  $P_{\text{exc}} \approx 10\ \text{nW}$  ( $h\nu_{\text{exc}} = 1,915\ \text{eV}$ ) gewonnen. Die optischen Nahfeldaufnahmen zeichnen sich gegenüber denen aus Abb. 4.6 durch eine kleinere, deutlich differenziertere Inselstruktur der Lumineszenzmaxima aus. In den Nahfeldbildern der verschiedenen PL-Energien ist das Intensitätsmaximum der Emission  $h\nu_{PL} = 1,656\ \text{eV}$  vom dem der Emission  $h\nu_{PL} = 1,644\ \text{eV}$  räumlich umgeben. Die Linie  $h\nu_{PL} = 1,647\ \text{eV}$  bildet gewissermaßen einen Hof um das Maximum von  $h\nu_{PL} = 1,656\ \text{eV}$ . Daraus lässt sich ableiten, dass sich eine  $(n-2)$ -Insel auf einer  $(n-1)$ -Insel der unteren Grenzfläche gebildet hat. Die-



**Abbildung 4.8:** Nahfeld-Aufnahmen der Probe Nr. 2 für verschiedene Detektionsenergien und Spektrenserie entlang der eingezeichneten Linie(n). Der Abstand zwischen benachbarten Positionen beträgt 160 nm. In den Spektren tritt ein viertes PL-Maximum auf (Pfeil), welches aufgrund seiner energetischen Lage einer weiteren Monolagenaufspaltung ( $n - 2$ ) zugeordnet werden kann.

ser Sachverhalt spiegelt die Tatsache wider, dass das Wachstum nicht vollständig zweidimensional abläuft. Vielmehr beginnt das Wachstum der folgenden Monolage, bevor die vorhergehende vollständig geschlossen wird. Prinzipiell sollten auch  $(n + 2)$ -Inseln auftreten. In den gemessenen Nahfeld-Aufnahmen konnten derartige Gebiete jedoch nicht ausfindig gemacht werden, was auf die Seltenheit einer weiteren Monolagenaufspaltung ( $n + 2$  bzw.  $n - 2$ ) schließen lässt.

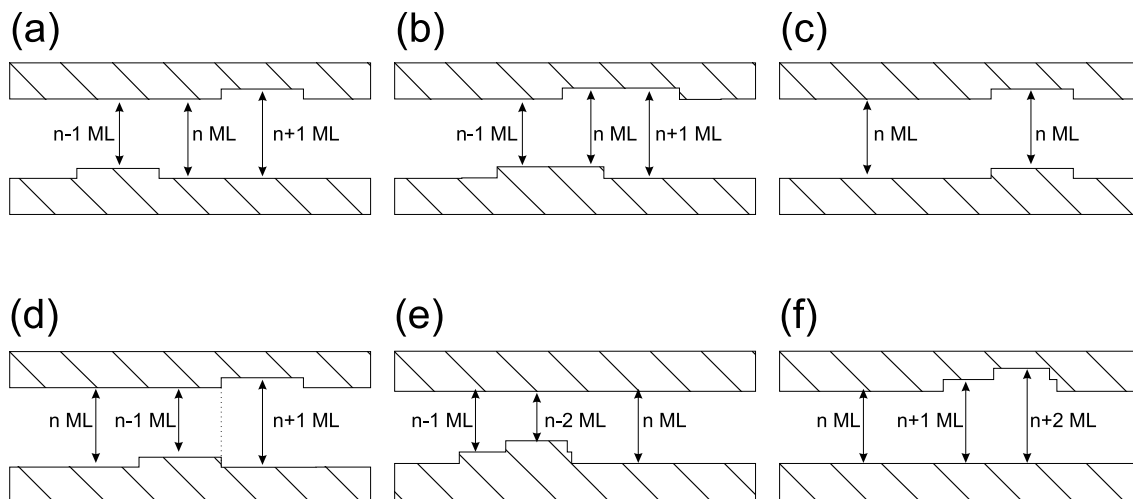
Die PL-Linien der einzelnen Wachstumsinseln in Abb. 4.8 sind durch eine sehr deutliche Feinstrukturaufspaltung gekennzeichnet. Dies liefert ein weiteres Argument für ein nicht-ideales zweidimensionales Wachstum, da innerhalb der Monolageninseln eine weitere Aufspaltung stattfindet, welche Bruchteile von Monolagen entspricht. Eine derartige Sub-ML-Aufspaltung entsteht durch geringe Potenzialfluktuationen, die durch das Fehlen einzelner Atome oder Atomgruppen des Quantenfilms oder des Barrierenmaterials an der Grenzfläche entstehen. Störungen der perfekten Monolageninsel können auf Interdiffusion einzelner Al-

und Ga-Atome an der Grenzfläche zurückzuführen sein. Aber auch der Wachstumsprozess selbst kann nicht vollständig geschlossene Monolagen oder auf den Wachstumsinseln verbliebene Adatome hinterlassen.

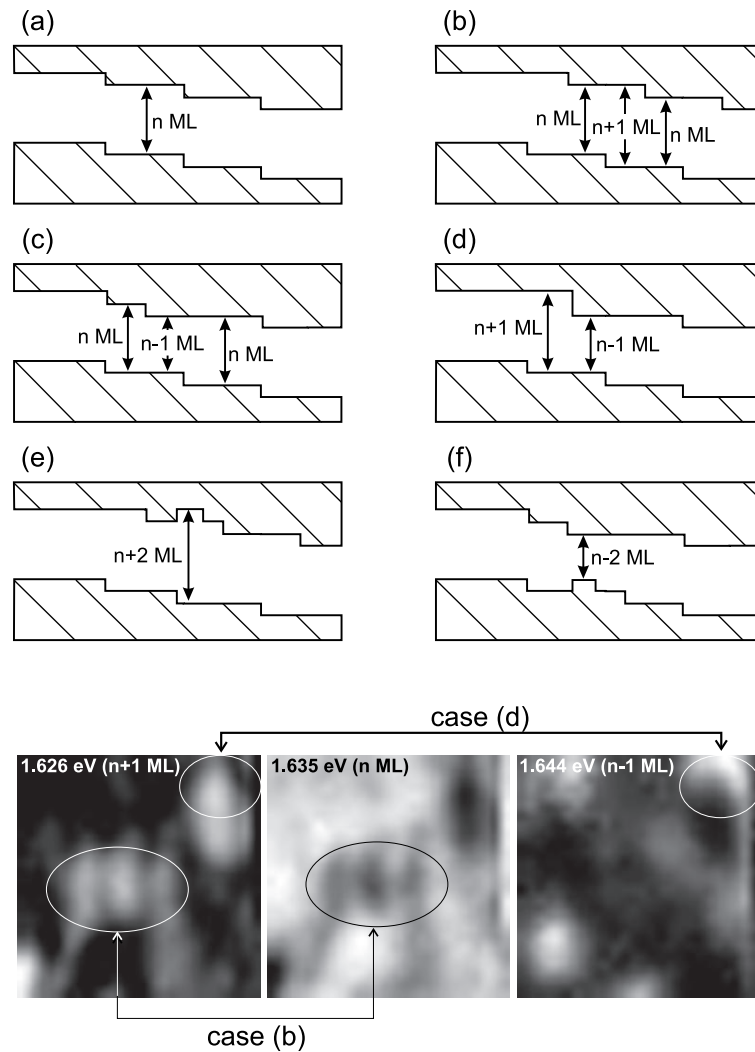
#### 4.2.4 Diskussion der Grenzflächen

Mit den aus den nahfeldoptischen Messungen gewonnenen Erkenntnissen können nun für die mit Wachstumsunterbrechung hergestellten GaAs-Quantenfilme zwei Fallbetrachtungen zur Morphologie der Grenzflächen gemacht werden. Unter der Voraussetzung sehr breiter Terrassen (Terrassenbreite  $\gg$  Scanweite) kann man den idealisierten Fall einer zweidimensionalen Inselnukleation auf einer praktisch atomar glatten epitaktischen Schicht betrachten, wodurch sich die Messungen durch sechs Möglichkeiten lateral variierender Dickenfluktuationen erklären lassen. Anhand von Abb. 4.9 wird wie folgt unterschieden. Treten räumlich unkorrelierte Inseln an beiden Grenzflächen auf, so befindet sich zwischen den Maxima der  $(n - 1)$ - und  $(n + 1)$ -aufgespaltenen Linien immer ein Maximum der mittleren Linie ( $n$  ML) [Abb. 4.9 (a,b)]. Eine räumliche Korrelation kann dagegen zu übereinander wachsenden Inseln führen, wobei die PL für  $n$  ML beibehalten wird [Abb. 4.9 (c)]. Liegen die Inseln an beiden Grenzflächen jedoch räumlich benachbart, so grenzt ein  $(n - 1)$ -ML-Emissionsmaximum direkt an ein  $(n + 1)$ -ML-Emissionsmaximum [Abb. 4.9 (d)]. Ein Doppelinselnwachstum aufgrund unvollständigen, d. h. nicht-idealen zweidimensionalen Wachstums führt zu  $(n - 2)$ - bzw.  $(n + 2)$ -Monolagenaufspaltung [Abb. 4.9 (e,f)]. Unter den sechs Möglichkeiten sind die in Abb. 4.9(a) und (b) dargestellten am häufigsten vertreten.

Für den Fall engstehender Terrassen (Terrassenbreite  $\ll$  Scanweite) muss eine



**Abbildung 4.9:** Idealisierte Darstellung der Verhältnisse an den Grenzflächen der GaAs-Quantenwell-Struktur (Terrassenbreite  $gg$  Scanweite). (a,b) Räumlich getrennte (unkorrelierte) Inseln; (c) räumlich korrelierte, deckungsgleiche Inseln; (d) räumlich korrelierte, benachbarte Inseln; Doppelinsel auf (e) der unteren sowie (f) auf der oberen Grenzfläche.



**Abbildung 4.10:** Realistische Darstellung für das Auftreten der Monolagenaufspaltung im Quantenfilm in terrassenförmig wachsenden Schichten. (a) Kein laterales Fließen der Stufen; (b) Überfließen der Stufen führt zu abwechselnden  $n$  und  $n+1$  ML-Dicken; (c) rückläufiges Fließen ergibt  $n-1$ -ML-Gebiete; (d) Zweifach-Stufen ergeben benachbarte  $n-1$ - und  $n+1$ -Bereiche; (e,f) Doppelinsel-Nukleationen auf den Terrassen ergeben höhere Monolagenaufspaltungen. Im unteren Teil der Abbildung ist gezeigt, wie sich ein Überfließen und eine Zweifach-Stufenstruktur in den optischen Aufnahmen manifestieren können.

qualitativ andere Diskussion erfolgen, die zu einem realistischeren Bild führt. In Abb. 4.10 sind die oben diskutierten Möglichkeiten der lateralen Dickenfluktuationen für diese zweite Fallbetrachtung adaptiert. Das Vorherrschen der mittleren PL-Linie in den Aufnahmen (Abb. 4.6/4.8) legt den Schluss nahe, dass das Wachstum der Terrassen über große Bereiche ohne laterales Fließen der Stufen erfolgt [Abb. 4.10 (a)]. Kommt es zum Überfließen bzw. zum rückläufigen Fließen der Terrassenstufen, dann entstehen Bereiche mit  $(n+1)$  bzw.  $(n-1)$  Monolagen Dicke des Quantenfilms [Abb. 4.10 (b),(c)]. Dies erklärt die längliche Form eini-

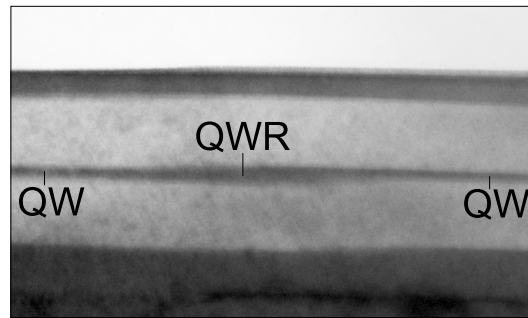
ger Intensitätsmaxima in den optischen Aufnahmen. Es treten außerdem Fälle auf, bei denen eine Terrasse aus einer doppelagigen Stufe besteht. Das kann zu unmittelbar benachbarten  $(n - 1)$ - und  $(n + 1)$ -Gebieten führen [Abb. 4.10 (a)]. Und schließlich kann das Zusammenspiel von zweidimensionalen Nukleationen auf einer Terrasse der oberen [Abb. 4.10 (e)] oder der unteren [Abb. 4.10 (f)] Grenzfläche mit den Fällen in Abb. 4.10 (b) oder (c) zu einer weiteren Monolagenaufspaltung, d. h.  $(n + 2)$  oder  $(n - 2)$  ML führen. In Abb. 4.8 ist dies für den Fall einer  $(n - 2)$ -ML-Aufspaltung gezeigt worden. Im unteren Teil der Abb. 4.10 sind noch einmal die Nahfeld-PL-Aufnahmen aus Abb. 4.6 (Pos. 1) wiedergegeben. Sehr deutlich zeigt sich eine alternierende Abfolge von  $n$  und  $(n + 1)$  ML in streifenförmigen Gebieten, was durch mehrfaches Überfließen nach Abb. 4.10 (b) erklärt werden kann. Es finden sich aber auch Hinweise auf unmittelbar benachbarte  $(n - 1)$  und  $(n + 1)$ -Gebiete nach Abb. 4.10(d). Somit lässt sich die Erklärung für die räumliche Variation der Intensitäten der beteiligten PL-Linien in den optischen Nahfeld-Aufnahmen anhand realistischer Vorstellungen über die Beschaffenheit der Quantenfilmgrenzfläche abrunden.

## 4.3 Quantendrähte

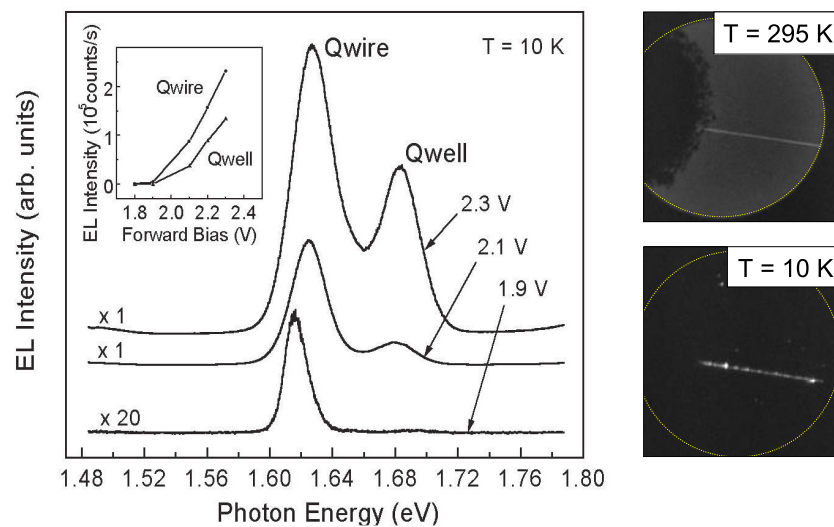
### 4.3.1 Quantendraht-LED-Strukturen

In Abschnitt 4.1 wurden Quantendrahtstrukturen erwähnt, die durch Überwachsen von in das Substrat geätzten Stufen mit einem Quantenfilm entstehen. Man spricht von sogenannten *sidewall quantum wires*. Solche Quantendrahtstrukturen wurden von Nötzel *et al.* realisiert [6]. Als Substrat dient GaAs mit einer (311)-Oberfläche, in die streifenförmige Mesen mit einigen Nanometern Tiefe entlang  $[01\bar{1}]$  geätzt werden. Nachfolgend wird eine GaAs/(Al,Ga)As-Quantenfilmstruktur aufgewachsen. Das Barrierenmaterial  $(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})\text{As}$  wächst relativ gleichmäßig über den geätzten Stufen, während GaAs eine veränderte Wachstumsgeschwindigkeit an den Kanten der Stufen aufweist. Die Adatome wandern verstärkt zu den nach GaAs(100) geneigten Stufenkanten und bilden so eine Verdickung des Quantenfilms entlang der Stufenkante. Damit kommt es zu einem weiteren Einschlusspotenzial für Ladungsträger in der Wachstumsebene ( $x$ - $y$ ). Eine eindimensionale Struktur — ein Quantendraht — entsteht. In Abb. 4.11 ist der Querschnitt einer solchen Struktur in der Aufnahme eines Transmissionselektronenmikroskops (TEM) gezeigt. Der Nachweis der Quantendraht Eigenschaften erfolgte durch polarisationsabhängige  $\mu$ -PL-Messungen [74], Magneto-PL-Spektroskopie [75] und vor allem durch orts aufgelöste SNOM-PL-Messungen, durch die die eindimensionale Subbandstruktur nachgewiesen werden konnte [76].

In einem weitergehenden Schritt wurde die Quantendrahtstruktur symmetrisch in die intrinsische Zone einer  $p$ - $i$ - $n$ -Leuchtdiode (LED) eingebaut [8]. In den Untersuchungen an derartigen Strukturen beobachteten Ma *et al.* [7], dass bei Anlegen einer äußeren Spannung in Vorwärtsrichtung eine um zwei Größenordnungen intensivere Lumineszenz aus dem Quantendrahtgebiet gegenüber dem



**Abbildung 4.11:** TEM-Aufnahme eines Quantendrahtes, der durch Überwachsen einer Mesakante mit einem Quantenfilm entsteht. Aus [77].



**Abbildung 4.12:** Selektive Elektrolumineszenz einer Quantendraht-LED-Struktur. Bei Anlegen einer Vorwärtsspannung überwiegt die Emission aus dem Quantendrahtbereich (links). Der Effekt ist mit einem einfachen Lichtmikroskop beobachtbar (rechts). Aus [8].

Quantenfilmgebiet vorherrscht, wie in Abb. 4.12 zu erkennen ist. Der Effekt wurde durch einen selbstverstärkten Ladungsträgereinfang in den Quantendraht erklärt. Es wurde diskutiert, dass bei einer Injektion von Löchern aus dem  $p$ -Gebiet bzw. Elektronen aus dem  $n$ -Gebiet in den Quantenfilm die Ladungsträger sich unabhängig voneinander in diesem bewegen. Die höhere Beweglichkeit der Elektronen führt zu einem stärkeren Einfang selbiger durch den Quantendraht, welches negativ aufgeladen wird und damit ein attraktives Potenzial für die aus dem  $p$ -Gebiet injizierten Löcher darstellt.

Eine Alternative zu dem o. g. Modell stellt die Ladungsträgerinjektion über sog. senkrechte Quantenfilme dar, die durch Ausdünnen des Al-Gehalts des Barrierenmaterials entstehen können. Dieser Effekt wurde für V-Grabenquantendrähte beobachtet [78]. Eine weitere Möglichkeit von lokal bevorzugtem, senkrechten Stromtransport in den Quantendraht könnte in Dotierungsinhomogenitäten der  $p$ - bzw.  $n$ -Schicht der Diode entlang der Mesakanten begründet sein. Das Vorhan-



densein von derartigen Injektionskanälen wurde bei Sidewall-Quantendrähten jedoch bislang ausgeschlossen.

Um das Verhalten der Ladungsträger in der Quantendraht-LED-Struktur zu untersuchen, wurden mittels EBIC orts aufgelöst Testströme in der Probe erzeugt (vgl. [8]). Gleichzeitig konnte das CL-Signal des Quantendrahts aufgenommen werden. Der Nachteil dieser Methode besteht darin, dass die Energie der injizierten Primärelektronen extrem hoch ist (mehrere keV). Dadurch kommt es zur Bildung einer Sekundärelektronenlawine. Die gestreuten Sekundärelektronen fächern in der Probe auf und zerstören dadurch die hohe Ortsauflösung des Primärstrahls. Letztlich ist die Anregungsenergie der gebildeten Elektron-Loch-Paare nicht kontrollierbar. Eine Alternative bietet das SNOM. Hier können mit Hilfe optischer Anregungen Ladungsträger erzeugt werden, deren Energie durch Wahl der Wellenlänge des Lichts abstimmbare ist. Dadurch entstehen neue Möglichkeiten zur Untersuchung des Ladungsträgertransports, wie in diesem Abschnitt gezeigt wird.

### 4.3.2 Aufbau der Proben

Die Quantendraht-LED-Strukturen<sup>8</sup> wurden auf *p*-dotierten GaAs(311)A-Substraten gewachsen [8], in welche streifenförmige Mesen von 75  $\mu\text{m}$  Breite und 17 nm Tiefe entlang der GaAs[01 $\bar{1}$ ]-Richtung nasschemisch geätzt waren. Die *p-i-n*-Struktur baut sich aus folgenden Schichten auf (vgl. Abb. 4.13). Substratseitig wurde zuerst das *p*-Gebiet aufgetragen, bestehend aus einer hochdotierten 50 nm dicken GaAs-Pufferschicht ( $p^+ = 1,0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) und einer 100 nm dicken

$\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Schicht ( $p = 0,6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ). Das intrinsische Gebiet bestand ebenfalls aus  $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ . Im Zentrum der intrinsischen Zone wurde ein stark gekoppelter Doppel-Quantenfilm (3 nm GaAs, 2 nm  $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ , 3 nm GaAs) eingebaut. Das *n*-Gebiet bestand wiederum aus einer 100 nm dicken  $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$  ( $n = 0,6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) sowie einer 40 nm dicken hochdotierten GaAs-Kontaktschicht ( $n^+ = 1,0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ). Die Dotierung der Struktur erfolgte mittels amphoterem Einbau von Si als Akzeptor ( $T_s = 610^\circ\text{C}$ ,  $\text{As}_4/\text{Ga}$ -Fluss = 5) sowie als Donator ( $T_s = 490^\circ\text{C}$ ,  $\text{As}_4/\text{Ga}$ -Fluss = 20).

In die Proben wurden kreisförmige Mesen von 230  $\mu\text{m}$  Durchmesser bis hinunter zur *p*- $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Schicht geätzt. Die Mesa-Kontaktierung erfolgte substratrückseitig mit Au/Ge und auf der Mesa-Top-Seite durch einen Au/Be Ringkontakt (jeweils ohmsche Kontaktierung).

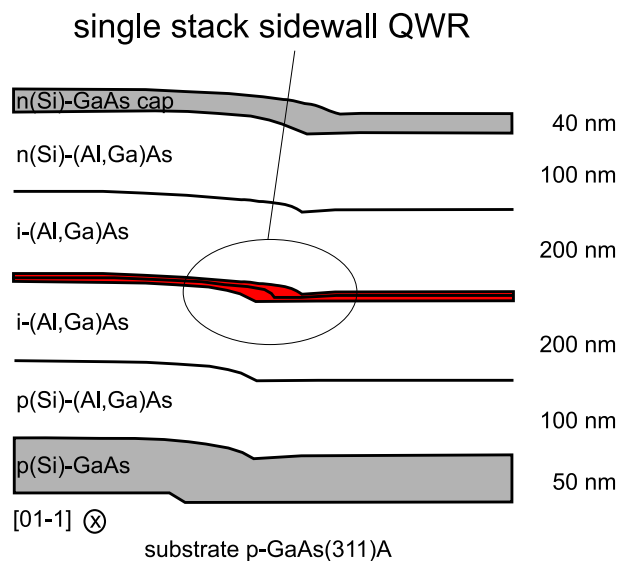
### 4.3.3 SNOM-Untersuchungen

#### Photostromanregung an einer gebrochenen Mesa

Aus den Überlegungen zur selektiven Ladungsträgerinjektion entstand die Fragestellung, ob etwaige Injektionskanäle oder auch Strompfade nachgewiesen

<sup>8</sup>Probe M5.2044



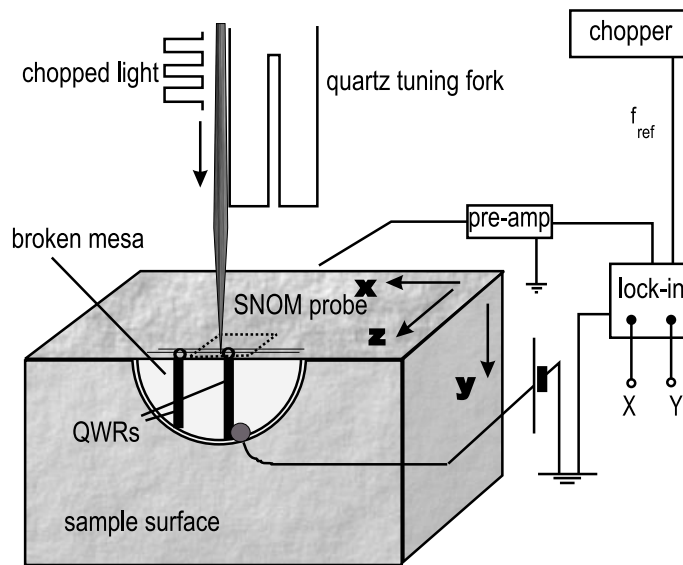


**Abbildung 4.13:** Aufbau der  $p$ - $i$ - $n$  (Al,Ga)As-Quantendraht-LED-Struktur mit einem stark gekoppelten Doppelquantenfilm (3 nm GaAs, 2 nm  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ , 3 nm GaAs). Die Dotierung erfolgte durch den amphoteren Einbau von Si-Atomen. Aus [8].

werden können. Die Idee bestand darin, von außen orts aufgelöst Testströme in die Struktur zu injizieren und deren Beitrag zum Gesamtstrom zu ermitteln. Eine Möglichkeit solcher Messungen bot das SNOM, mit dem photogenerierte Ladungsträger bei hoher Ortsauflösung in der Probe erzeugt werden können.

Von großem Interesse waren orts aufgelöste Photostrommessungen an der Spaltfläche einer senkrecht zum Verlauf des Quantendrahtes gebrochenen Mesa, da so der Querschnitt der Struktur untersucht werden konnte. Abbildung 4.14 verdeutlicht die Messkonfiguration im SNOM. Die experimentelle Schwierigkeit bestand darin, dass die Messungen an der äußersten Kante der Probe stattfanden, was schnell zu einer Beschädigung der SNOM-Spitze führen konnte. Außerdem war keine topographische Information vorhanden, die Rückschlüsse auf die Lage des Quantendrahts zugelassen hätte.

Die Probe wurde mit der Spaltfläche senkrecht zur Achse der Nahfeldsonde aufgebaut. Der Einbau in das SNOM erfolgte so, dass die Mesa bzw. die Elektrolumineszenz der Struktur durch das Fernfeld-Objektiv beobachtet werden konnte, um bei der Positionierung der SNOM-Spitze eine grobe Orientierung zu geben. Als Nahfeldsonden kamen metallbedampfte (Al/Cr) SNOM-Spitzen der Fa. Nanonics mit einer Apertur von 150 nm zum Einsatz. Aufgrund der o. g. Schwierigkeiten beim Auffinden der Quantendraht-Position ( $x_0, z_0$ ) innerhalb der ( $x, z$ )-Ebene der Spaltfläche wurde im Kollektionsmodus auf das EL-Signal des Quantendrahts bei in Vorwärtsrichtung betriebener LED (+1,9 V) justiert. Dazu erfolgte zunächst eine Annäherung der Spitze an die Spaltfläche. Durch Ausnutzen des Scherkraftsignals des Schwingquarzes im Topographie-Modus konnte mit Hilfe einer schrittweisen Grob-Positionierung des Probenstückes die Mesakante und damit das  $p$ - $i$ - $n$ -Gebiet gefunden werden. Zuerst wurde über das EL-Signal die



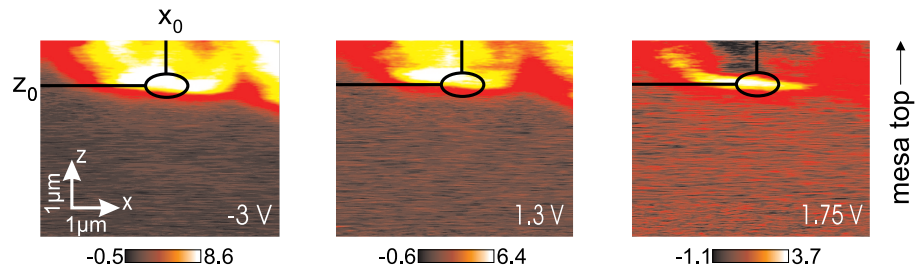
**Abbildung 4.14:** Schema der Messkonfiguration zur ortsaufgelösten Photostromanregung an der Spaltkante einer Quantendraht-LED-Mesa.

Lage des Quantenfilms gefunden und damit die Koordinate  $z_0$  festgelegt. Die Koordinate  $x_0$  des Quantendrahtes ergab sich schließlich durch seitliches Verfahren der Spitze parallel zur Mesa-Kante, d. h. entlang des Quantenfilms, durch Detektion der Quantendraht-EL.

Für die elektronische Schaltung zur Messung des Photostroms kam ein Lock-In-Verstärker<sup>9</sup> zum Einsatz, um das Signal-Rausch-Verhältnis entscheidend zu verbessern (Abb. 4.14). Das anregende Laserlicht wurde vor dem Fasereinkoppler durch einen *Chopper* mit einer Frequenz von  $f_0 = 500$  Hz moduliert. Die Spannung an der Probe wurde mit einer Gleichspannungsquelle<sup>10</sup> angelegt. Ein in den Stromkreis geschalteter Vorverstärker wandelte die Wechselstromanteile in entsprechende Wechselspannungsanteile um. Der Widerstand des Vorverstärkers lag in der Größenordnung von  $100 \Omega$  und war damit gegenüber dem Probenwiderstand ( $\sim 20 \text{ k}\Omega$ ) vernachlässigbar, so dass der Spannungsabfall fast ausschließlich über der Probe stattfand. Die phasenrichtige Verstärkung aller der Chopperfrequenz entsprechenden Signale durch den Lock-In erfolgte bei abgeglichener Phasendifferenz ( $\Delta\phi = 0$ ), so dass für die weitere Aufzeichnung nur der Kanal  $X = A \cos \Delta\phi \equiv A$  ausgelesen wurde. Ein positiver Ausschlag der Amplitude  $A$  wurde dabei als positives Photostromsignal ausgewertet. Im folgenden bedeutet «positiver Photostrom» den Strom optisch generierter Ladungsträger, der in Sperrrichtung der Diode fließt. Ein Strom optisch generierter Ladungsträger in Durchlassrichtung hingegen soll als «negativer Photostrom» bezeichnet werden ( $A < 0$ ).

<sup>9</sup>Ithaco 3961B *Two Phase Lock-In Amplifier*

<sup>10</sup>HP 3245A *Universal Source*



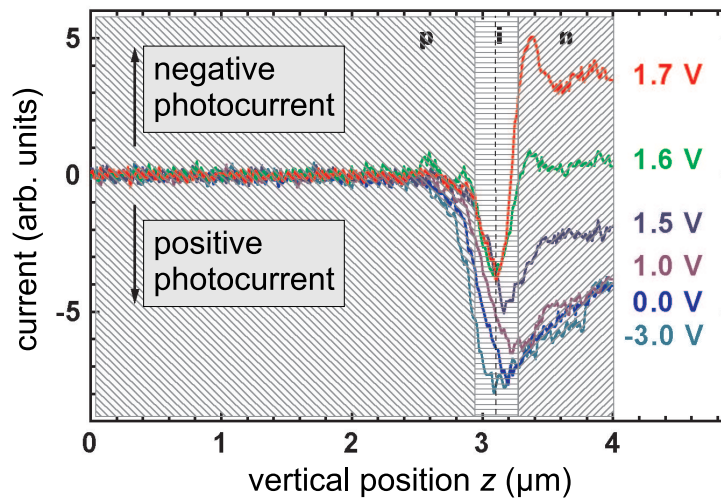
**Abbildung 4.15:** Räumliche Verteilung des Photostromsignals für verschiedene Diodenspannungen in einem  $4 \times 6 \mu\text{m}^2$  großen Gebiet der Spaltfläche der Mesa. Die Position  $(x_0, z_0)$  gibt das Maximum der Quantendraht-EL an.

Die Messungen wurden bei einer Temperatur von  $T = 25 \text{ K}$  im *constant gap mode* durchgeführt. Es wurde ein Gebiet von  $4 \times 6 \mu\text{m}^2$  um die Quantendrahtposition herum mehrfach bei schrittweiser Änderung der angelegten Spannung gescannt. Durch die Wahl einer optischen Anregungsenergie  $h\nu_{\text{exc}} = 2,33 \text{ eV}$  oberhalb der Bandlücke der Barriere ( $E_g = 1,97 \text{ eV}$ ) war sichergestellt, dass Ladungsträger in allen Gebieten der gescannten Fläche generiert werden. Die Anregungsleistung betrug etwa  $1 \mu\text{W}$ . Mit einer Scan-Geschwindigkeit in  $x$ -Richtung von  $0,5$  Zeilen pro Sekunde und einer Zeitkonstante  $\tau = 10 \text{ ms}$  des Lock-in-Verstärkers lag die Ortsauflösung des Photostromsignals bei  $\Delta x = 30 \text{ nm}$  und war damit vernachlässigbar gegenüber der Auflösung der SNOM-Spitze (Aper-  
tur  $\varnothing = 150 \text{ nm}$ ). Eine Auswahl der so entstandenen Photostrombilder sind in Abb. 4.15 für Diodenspannungen  $U_{\text{LED}} = -3, 0, +1,3$  und  $+1,75 \text{ V}$  gezeigt. Helle Gebiete entsprechen hier einem positiven Photostromsignal, während schwarze Gebiete bei  $U_{\text{LED}} = +1,75 \text{ V}$  einen negativen Photostrom repräsentieren. Messungen bei höheren Spannungen waren nicht mehr möglich, da der Flachbandfall<sup>11</sup> bei  $U_{\text{LED}} = +1,8 \text{ V}$  erreicht wird. Der Vorverstärker wird oberhalb dieser Spannung durch den stark ansteigenden Gleichstromanteil in Vorwärtsrichtung (Injektionsstrom) übersteuert.

Für Sperrspannungen sowie Spannungen in Durchlassrichtung bis zu  $U_{\text{LED}} \leq +1,5 \text{ V}$  zeigen die Bilder eine qualitativ gleichartige räumliche Verteilung des Photostromsignals. Für  $z < z_0$  wird kein Photostrom gemessen. Bei  $z = z_0$  steigt das Signal sprunghaft an und erreicht ein Maximum des positiven Photostroms. Oberhalb des Maximums ( $z > z_0$ ) ist der Abfall des Photostromsignals relativ flach. Zur besseren Verdeutlichung ist in Abb. 4.16 eine Auswahl an Linienscans entlang der  $z$ -Richtung durch  $x_0$  gezeigt. Unmittelbar vor Erreichen des Flachbandfalls ( $U_{\text{LED}} > +1,5 \text{ V}$ ) dagegen verändern sich die Aufnahmen deutlich. In  $z$ -Richtung ist zunächst wieder ein Maximum des Photostromsignals bei  $z_0$  zu erkennen. Für Werte  $z > z_0$  schlägt das Signal aber abrupt in einen negativen Photostrom um.

Überraschenderweise besitzt das positive Photostromsignal auch ein Maximum

<sup>11</sup>D. h. die Situation, in der das eingebaute elektrische Feld der Diode durch das angelegte äußere Feld kompensiert wird.



**Abbildung 4.16:** Linienscans entlang  $z$ -Richtung durch das Maximum der Quantendraht-EL  $x_0$  (vgl. Abb. 4.15) für Diodenspannungen von  $U_{\text{LED}} = -3,0$  bis  $+1,7$  V.

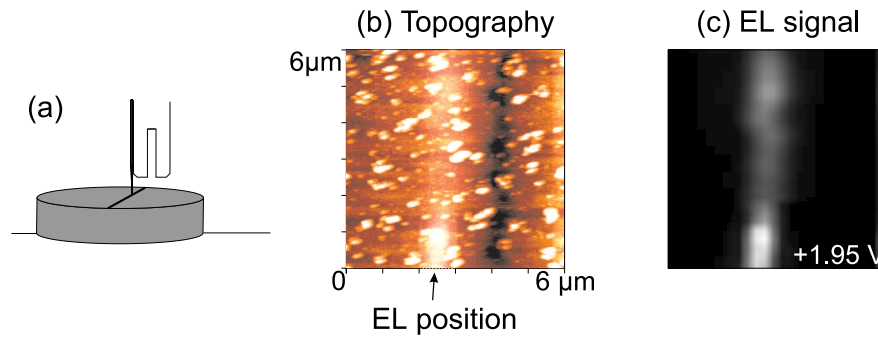
bzgl. der  $x$ -Richtung, und zwar an der Position  $(x_0, z_0)$ , wo vorher ein Maximum der EL des Quantendrahtes festgestellt wurde. Dieser Sachverhalt motiviert die folgenden Untersuchungen zur Photostromanregung mit einfallendem Licht parallel zur  $z$ -Richtung an einer ungespaltenen Mesa.

### Photostromanregung durch die Probenoberfläche

Die Nahfeld-Photostromuntersuchungen an der Spaltkante einer gebrochenen Mesa wurden ergänzt durch orts aufgelöste Photostrommessungen an einer unebrochenen Mesa in Draufsichtkonfiguration. Hier stehen auch EBIC-Daten zur Verfügung, so dass ein Vergleich zwischen Photostromanregung durch optische Nahfeldmikroskopie und Anregung durch Injektion von Ladungsträgern (Elektronen) möglich ist.

Die Messanordnung folgte dem gleichen Schema wie in den vorhergehenden Untersuchungen, nur dass eine neue (d. h. unebrochene) Mesa aus einem Probenstück desselben Wafers verwendet wurde. Da die Photostromanregungen nun von der Mesaoberseite her erfolgten und sich der Quantendraht etwa 340 nm unterhalb der Oberfläche befand, war eine stärkere Intensität des durch die Nahfeldsonde transmittierten Laserlichts erforderlich<sup>12</sup>. Aus diesem Grunde wurden unbedampfte, geätzte Faserspitzen verwendet. Die Anregungsleistung lag in der Größenordnung von 1  $\mu\text{W}$ . Die Wahl der Lock-In-Zeitkonstanten und der Scangeschwindigkeit entsprach den Einstellungen der vorhergehenden Messungen. In Abb. 4.17(a) sind die Messkonfiguration, in 4.17(b) ein Topographiescan sowie in 4.17(c) ein Nahfeldbild der Quantendraht-EL bei  $T = 24$  K gezeigt. Als Scan-

<sup>12</sup>Die Eindringtiefe in  $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$  beträgt bei den verwendeten Wellenlängen größenordnungsmäßig  $1/\alpha \sim 1 \mu\text{m}$ .

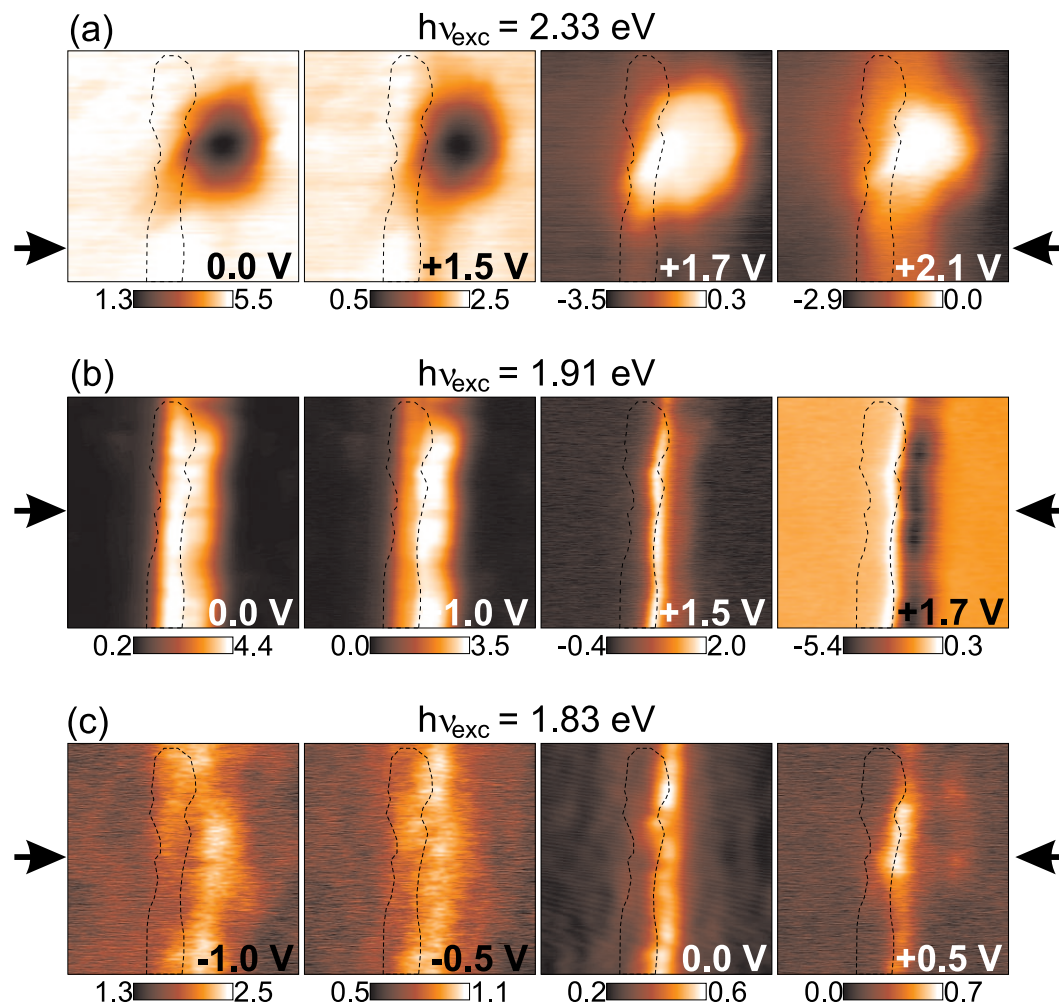


**Abbildung 4.17:** Photostromuntersuchungen mit Anregung durch die Probenoberfläche. (a) Messkonfiguration; (b) Topographie der überwachsenen Mesakante; (c) Aufgenommenes EL-Nahfeldbild bei  $U_{\text{LED}} = +1,95 \text{ V}$ .

bereich wurde ein Fenster von  $6 \times 6 \mu\text{m}^2$  gewählt. Die Topographie bildet einen länglichen Graben als Oberflächenmerkmal der überwachsenen Mesakante ab. Das nebenstehende EL-Nahfeldbild gibt dagegen die genaue Position des Quantendrahts in der Struktur wieder, welche ca.  $1,5 \mu\text{m}$  nach links gegenüber dem Graben im Topographiebild versetzt liegt.

Abbildung 4.18 stellt mit Bezug auf Abb. 4.17 die Ergebnisse der Photostromanregungen zusammen. Es wurde zunächst oberhalb der  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ -Bandlücke mit der Energie  $h\nu_{\text{exc}} = 2,33 \text{ eV}$  angeregt, um einen Vergleich mit den vorhergehenden Photostrommessungen an der Spaltfläche der Mesa zu erhalten [Abb. 4.18(a)]. Bei Spannungen unterhalb des Flachbandfalls ist eine weitgehend homogene Verteilung des positiven Photostroms zu erkennen, der lediglich in einem inselartigen Gebiet in der Nähe des Quantendrahts abgeschwächt wird. Im Flachbandfall und darüber hinaus bleibt das inselartige Gebiet erhalten und schwächt nunmehr den negativen Photostrom. Daraus lässt sich ableiten, dass es sich hierbei um Materialinhomogenitäten handelt, die sich beim Wachstum an der Stufenkante gebildet haben und eine schwächere Absorption des Lichtes hervorrufen, oder aber aufgrund geringerer elektrischer Leitfähigkeit ein schwächeres Signal ergeben. Weiterhin ist eine längliche, zum Verlauf des Quantendrahts parallele Struktur zu erkennen, die ebenfalls durch einen abgeschwächten negativen Photostrom gekennzeichnet ist. Wird mit Laserlicht einer Energie angeregt, die knapp unterhalb der Energielücke der  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ -Barriere liegt ( $h\nu_{\text{exc}} = 1,91 \text{ eV}$ ), so verändert sich die Verteilung des Photostroms stark [Abb. 4.18(b)]. Ein Maximum der Photostromanregung ist nunmehr auf ein streifenartiges Gebiet rechtsseitig parallel zum Verlauf des Quantendrahts konzentriert. Bei noch kleinerer Anregungsenergie ( $h\nu_{\text{exc}} = 1,83 \text{ eV}$ ) wird das Photostromsignal sehr schwach und ist nur noch bis  $U_{\text{LED}} = +0,8 \text{ V}$  messbar [Abb. 4.18(c)]. Daher kann hier keine Aussage über den Flachbandfall gemacht werden. Jedoch ist nach wie vor erkennbar, dass eine selektive Photostromanregung stattfindet, die sich auf einen streifenförmigen Bereich nahe der Quantendrahtposition beschränkt. Durch Vergleich mit der eingezeichneten Kontur der räumlichen EL-Verteilung aus Abb. 4.17(c) kann man erkennen, dass sich die streifenartigen Gebiete der Photostromanregung mit dem

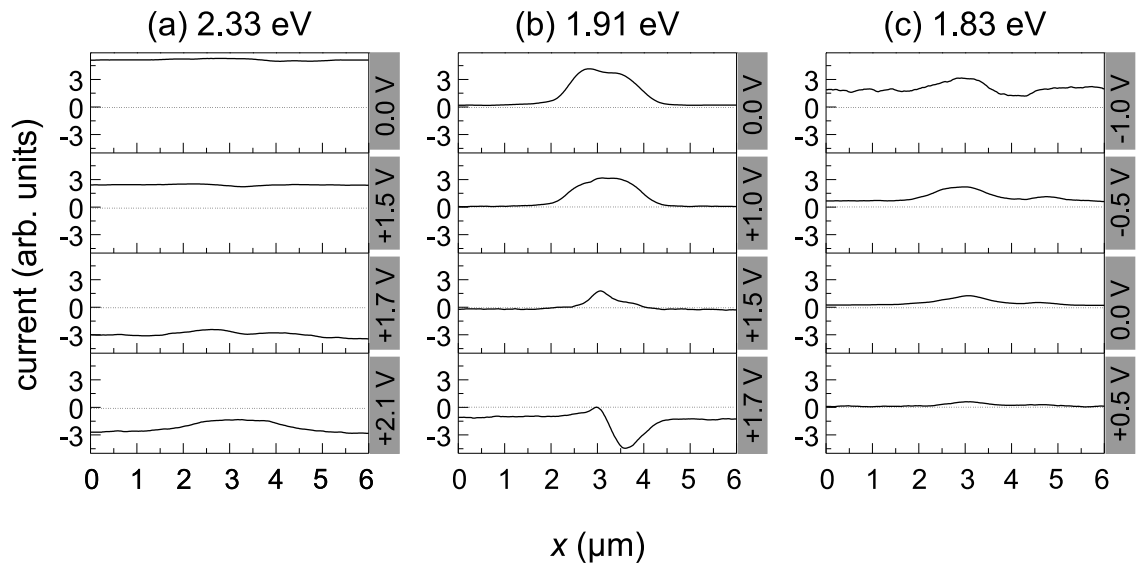




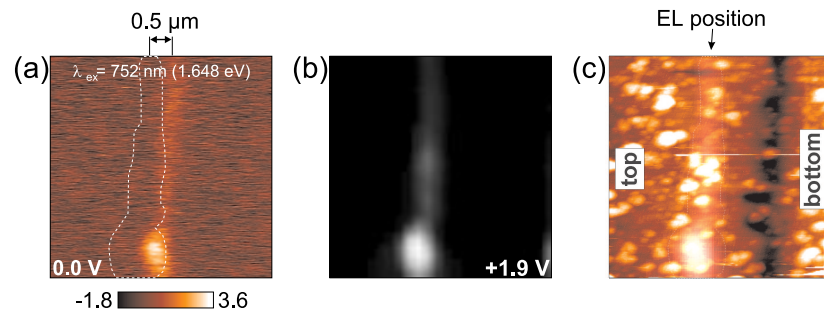
**Abbildung 4.18:** Räumliche Verteilung der Photoströmanregung unter Verwendung verschiedener Anregungsenergien (a) 2,33 eV, (b) 1,91 eV und (c) 1,83 eV. Die Stromstärken der Graustufenbalken sind in willkürlichen Einheiten angegeben, wobei positive Werte positiven Photoströmen und negative Werte negativen Photoströmen entsprechen. Als Referenz der Position des Quantendrahts ist eine Kontur des EL-Maximums aus Abb. 4.17 in allen Bildern wiedergegeben.

räumlichen EL-Maximum des Quantendrahts überlappen. In Abb. 4.19 sind typische Linienprofile der Photostromverteilungen abgebildet, die einen besseren quantitativen Vergleich der Stromsignale erlauben. Positive Werte entsprechen einem positiven Photostrom, negative Werte stellen einen negativen Photostrom dar. Die Linienprofile geben zudem einen Überblick über die abnehmende Breite der streifenartigen Gebiete in Abb. 4.18(b) und (c), wenn die angelegte Spannung in Richtung Flachbandzustand erhöht wird.

In einer weiteren Messung (an einer anderen Probenstelle) wurde mit  $h\nu_{\text{exc}} = 1,65 \text{ eV}$  angeregt. Diese Energie liegt unterhalb der Quantenfilm- und oberhalb der Quantendraht-EL. Wie in Abb. 4.20 gezeigt ist, kann selbst bei dieser nahezu resonanten Anregung des Quantendrahtgrundzustandes noch ein Photostrom



**Abbildung 4.19:** Linienscans durch die in Abb. 4.18 gezeigten räumlichen Photostromverteilungen (siehe Pfeile) für (a)  $h\nu_{\text{exc}} = 2,33$  eV, (b)  $h\nu_{\text{exc}} = 1,91$  eV und (c)  $h\nu_{\text{exc}} = 1,83$  eV.



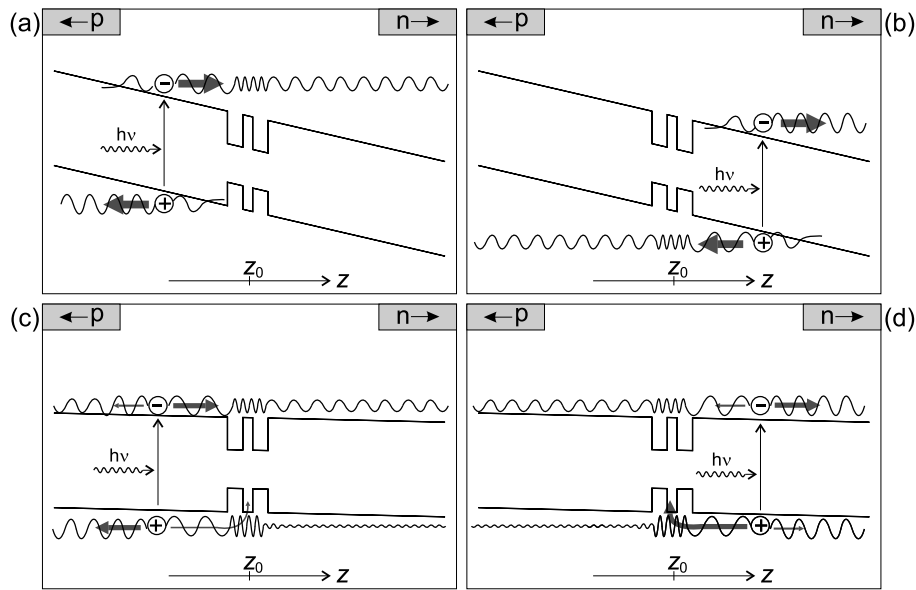
**Abbildung 4.20:** (a) Photostromsignal bei Anregung zwischen Quantenfilm- und Quantendrahtenergie der EL; (b) zugehöriges Nahfeldbild der EL bei  $U_{\text{LED}} = +1,9$  V; (c) Oberflächentopographie ( $6 \times 6 \mu\text{m}^2$ ).

gemessen werden. Die angelegte Spannung beträgt hierbei  $U_{\text{LED}} = 0,0$  V. Im Vergleich von Photostromanregung und EL-Signal in Abb. 4.20(a) und (b) ist ein gemeinsames Maximum am unteren Rand der Aufnahmen zu erkennen.

#### 4.3.4 Diskussion

Die Ergebnisse der **Photostromanregung an der Spaltfläche der gebrochenen Mesa** mit der Anregungsenergie  $h\nu_{\text{exc}} = 2,33$  eV lassen sich durch eine Unterscheidung in zwei Fälle verstehen. Im ersten Fall werden angelegte Spannungen in Sperrrichtung sowie in Durchlassrichtung der Diode bis etwa  $U_{\text{LED}} = 1,5$  V betrachtet. Das interne elektrische Feld der Diode ist hierbei die treibende Kraft für den Transport der erzeugten Ladungsträger. Im *p-i-n*-Gebiet generier-





**Abbildung 4.21:** Zur effektiven Beweglichkeit von angeregten Elektronen und Löchern unter Einfluss der Quantenfilmebene und in Abhängigkeit vom Ort der Anregung sowie der Bandverbiegung: (a)  $z < z_0$ ,  $U_{LED} < 1,5$  V, (b)  $z > z_0$ ,  $U_{LED} < 1,5$  V, (c)  $z < z_0$ ,  $1,5$  V  $< U_{LED} < 1,8$  V, (d)  $z > z_0$ ,  $1,5$  V  $< U_{LED} < 1,8$  V. In (d) wird die Drift der Löcher zum  $p$ -Gebiet unterdrückt.

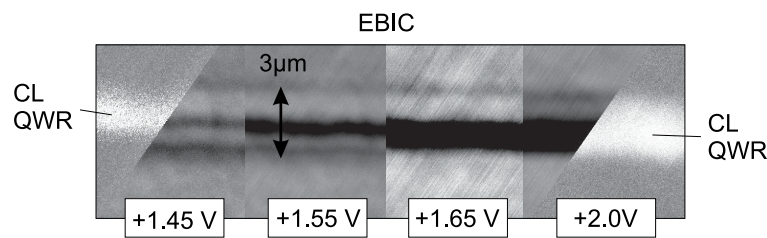
te Elektron-Loch-Paare werden im dort herrschenden elektrischen Feld getrennt. Elektronen (Löcher) driften zum  $n$ -Gebiet ( $p$ -Gebiet) und generieren somit einen positiven Photostrom. In Abb. 4.21 ist eine schematische Darstellung der Wellenfunktionen der angeregten Ladungsträger gegeben. Die Transmission der Elektronen und Löcher durch die Quantenfilmebene ist aufgrund der Bandverbiegung relativ hoch [Abb. 4.21(a) und (b)], so dass der Einfang in den Quantenfilm bzw. Quantendraht für beide Ladungsträgerarten vernachlässigt werden kann. Das Linienprofil in  $z$ -Richtung (Abb. 4.16) zeigt für die Spannungen  $U_{LED} < 1,5$  V ein Verhalten, das auch für eine gewöhnliche  $p$ - $i$ - $n$ -Diode zu erwarten gewesen wäre, d. h. es gibt ein Maximum des Photostroms, wenn die Nahfeldsonde Ladungsträger im intrinsischen Gebiet der Diode generiert.

Für den Fall, dass durch die angelegte Spannung der Flachbandzustand nahezu erreicht wird, ist eine qualitative Änderung der Verteilung des Photostromsignals zu beobachten. Anhand der Linienprofile in Abb. 4.16 für  $U_{LED} \geq 1,5$  V ist zu sehen, dass für  $z < z_0$  zunächst ein positiver Photostrom generiert wird. Bei Werten  $z > z_0$  schlägt das Signal überraschend in einen negativen Photostrom um. Eine mögliche Erklärung dieses Verhaltens kann durch Betrachtung der unterschiedlichen Wellenfunktionen von Elektronen ( $\mu_e$ ) und Löchern ( $\mu_l$ ) und den Einfluss des Quantenfilms auf die 'effektiven Beweglichkeiten' der Ladungsträger gegeben werden. Elektronen (Löcher), die in der intrinsischen Zone zwischen der Quantenfilmebene und der  $p$ -Schicht ( $n$ -Schicht) angeregt werden, müssen die Quantenfilmebene überwinden, um zu einem Photostrom beitragen zu können. Entsprechend einer größeren effektiven Beweglichkeit der Elektronen ist deren

Transmission durch die Quantenfilmebene höher als für Löcher. In Abb. 4.21(c) ist die Anregung der Elektronen-Loch-Paare im Gebiet zwischen Quantenfilmebene und  $p$ -Schicht dargestellt. Die Löcher fließen ins  $p$ -Gebiet ab, während die Elektronen die Quantenfilmebene zu überwinden haben. Der Einfluss des Quantenfilmgebiets ist aber gering, so dass ein Elektronenfluss zum  $n$ -Gebiet und letztlich ein positiver Photostrom zustande kommt. Wird dagegen zwischen Quantenfilmebene und  $n$ -Gebiet angeregt, müssen nunmehr die Löcher die Quantenfilmebene überwinden, um einen positiven Photostrom zu erzeugen. Offenbar ist aber deren Transmission durch die Quantenfilmebene aufgrund ihrer geringeren effektiven Beweglichkeit gehemmt [Abb. 4.21(d)]. Es kann kein positives Photostromsignal generiert werden. Das Auftreten eines negativen Photostroms bei Anregung zwischen Quantenfilmebene und  $n$ -Gebiet wird möglicherweise durch folgende Faktoren bedingt. Zum einen müssen bei schwachen internen elektrischen Feldern neben den Driftströmen auch Diffusionsströme betrachtet werden, womit ein Stromfluss entgegen der Feldrichtung entstehen kann. Zweitens wird in der Literatur über den Effekt von lokalisierten Raumladungen auf die Strom-Spannungs-Charakteristik (photovoltaischer) Dioden mit eingebauten Quantenfilmstrukturen berichtet [79]. Demnach würde eine Verschiebung der I-U-Kurve zu niedrigeren Schwellspannungen einen Injektionsstrom verursachen. Drittens muss die Rekombination von Elektronen, die entgegen der Feldrichtung ins  $p$ -Gebiet gelangt sind, berücksichtigt werden. Ein solcher Rekombinationsvorgang im  $p$ -Gebiet würde einen Injektionsstrom ‚simulieren‘. Generell muss aber auch der Umstand berücksichtigt werden, dass die Bandverbiegungen an der Oberfläche der Spaltkante einen gewissen Einfluss auf die Eigenschaften der  $p$ - $i$ - $n$ -Diode haben.

Das ursprüngliche Ziel dieser Untersuchungen war, einen Nachweis für mögliche Injektionskanäle zu finden. Es wurden jedoch keine Maxima für die Photostromanregung beobachtet, die in  $z$ -Richtung, also senkrecht zum Quantenfilm bzw. Quantendraht verlaufen. Die Existenz von Injektionskanälen kann demnach ausgeschlossen werden. Das Auftreten eines Maximums des Photostromsignals in  $x$ -Richtung bei  $x_0$  wird im weiteren Verlauf dieses Abschnittes im Zusammenhang mit der folgenden Diskussion erörtert.

Die **Photostromanregungen durch die Probenoberfläche** lassen sich mit EBIC-Messungen vergleichen, die an den Quantendraht-LED-Strukturen durchgeführt wurden [80]. Abbildung 4.22 zeigt die Entwicklung des EBIC- sowie des CL-Signals bei steigender Vorwärtsspannung. Die räumliche Verteilung des EBIC-Signals entlang der Quantendrahtstruktur ist durch drei Minima, d. h. Gebiete geringeren Stromflusses, gekennzeichnet, die bei wachsenden Spannungen in Durchlassrichtung ineinander zusammenlaufen. In [8] wurde diskutiert, dass das mittlere der drei Minima durch die Quantendrahtstruktur selbst verursacht wird, da hier eine verstärkte Rekombination der angeregten Ladungsträger stattfindet. Dagegen werden die beiden äußeren Minima durch die Mesakante im Substrat bzw. in der obersten epitaktischen Schicht hervorgerufen. Der Winkel zwischen Probenoberfläche und der Richtung, mit der sich die Mesakante während des Wachstums lateral verschiebt, wird mit  $12^\circ$  ange-



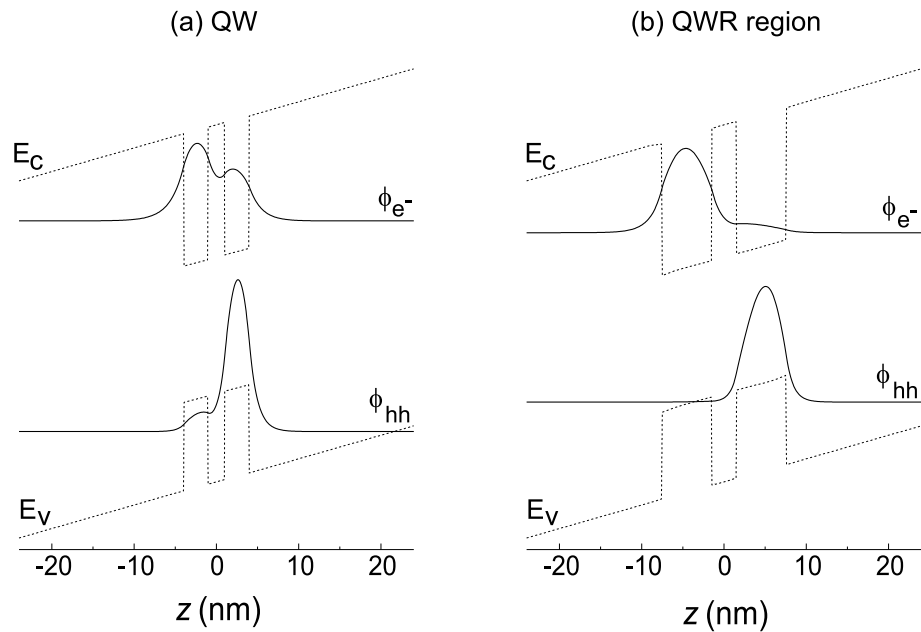
**Abbildung 4.22:** EBIC- und CL-Signal an einer Quantendraht-LED-Probe [80]. Der mittlere dunkle Kontraststreifen wird dem Quantendrahtgebiet zugeordnet.

geben. Dadurch lässt sich der Abstand von  $3\ \mu\text{m}$  der beiden äußeren Minima erklären.

Dieser Sachverhalt spiegelt sich auch in den im vorigen Abschnitt vorgestellten Messungen wider. Der laterale Abstand zwischen Mesakante (Graben im Topographiebild) und EL-Maximum beträgt dort ebenfalls etwa  $1,5\ \mu\text{m}$ . Im Vergleich zu den EBIC-Messungen zeigen die Photostromanregungen, die mit der Energie  $h\nu_{\text{exc}} = 2,33\ \text{eV}$ , also deutlich über der Bandlücke des  $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ , bei  $U_{\text{LED}} = +1,7\ \text{V}$  bzw.  $U_{\text{LED}} = +2,1\ \text{V}$  durchgeführt wurden, nur ein Minimum des (negativen) Photostroms.

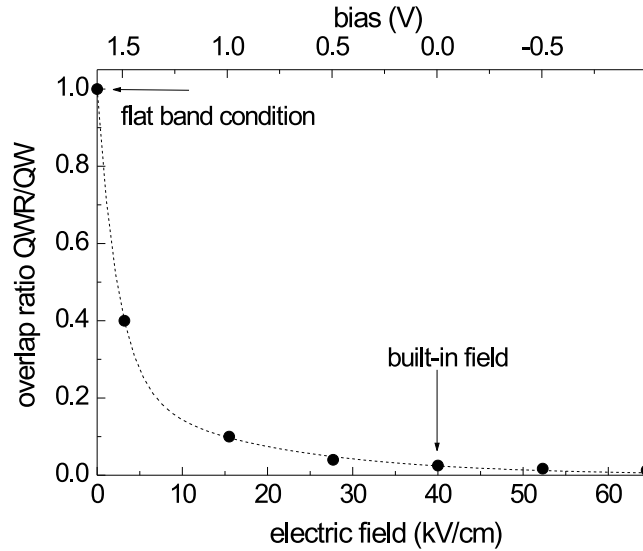
Die Absorption der Photonen bzw. Ladungsträgeranregung mit  $h\nu_{\text{exc}} = 2,33\ \text{eV}$  erfolgt im Prinzip in allen Schichten der Struktur, wobei die exponentiell abklingende Intensität nach dem Beer-Lambertschen Gesetz (mit schichtweise verschiedenem Absorptionskoeffizienten  $\alpha$ ) berücksichtigt werden muss. Die innerhalb des  $p$ - $i$ - $n$ -Gebiets generierten Elektronen-Loch-Paare werden im elektrischen Feld getrennt und tragen zum positiven Photostrom bei [siehe Abb. 4.19(a)]. Zwischen  $U_{\text{LED}} = 1,5\ \text{V}$  und  $U_{\text{LED}} = 1,7\ \text{V}$ , also noch vor Erreichen des Flachbandfalls, ist eine Vorzeichenumkehr des Stroms zu beobachten, der damit in einen negativen Photostrom übergeht. Die Erklärung hierfür erfolgt analog der oben geführten Diskussion, die die unterschiedliche Beweglichkeit und die sich damit ergebende verschiedene Einfangrate von Elektronen und Löchern in der Quantenfilmebene berücksichtigt. Aufgrund des exponentiellen Abklingens der Photonenstromdichte werden zudem mehr Elektronen-Loch-Paare zwischen Quantenfilmebene und  $n$ -Schicht als in der darunter liegenden  $p$ -seitigen Schicht der intrinsischen Zone generiert, wodurch der Effekt noch verstärkt wird. Generell wird das gemessene Stromsignal — ähnlich wie in EBIC — durch Inhomogenitäten der Struktur beeinflusst. Hierzu zählt neben der in Abb. 4.18(a) deutlich hervortretenden Materialinhomogenität auch das Quantendrahtgebiet selbst.

Die räumliche Verteilung des Photostromsignals ändert sich jedoch völlig, wenn mit Photonenenergien unterhalb der  $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Barriere angeregt wird ( $h\nu_{\text{exc}} < 1,97\ \text{eV}$ ). Die Absorption erfolgt nunmehr im Quantenfilm bzw. Quantendrahtgebiet [Abb. 4.18(b) und (c)] oder ausschließlich im Quantendrahtgebiet (Abb. 4.20). In all diesen Messungen ist ein Maximum des positiven Photostroms zu verzeichnen, welches sich rechtsseitig entlang einer Linie erstreckt, die die Lage der im Kollektionsmodus detektierten EL angibt. Die Gebiete maximalen



**Abbildung 4.23:** Vergleich der räumlichen Separation der Elektronen- und Lochwellenfunktionen im (a) Doppelquantenfilm und (b) Doppelquantendrahtgebiet durch das eingebaute elektrische Feld der LED (40 kV/cm). Zur Vereinfachung wurde das Quantendrahtgebiet als Quantenfilm mit zweifacher Dicke angenommen.

positiven Photostroms überlappen sich mit dem Gebiet der Quantendraht-EL. Bei der Diskussion dieser Beobachtungen steht die **Betrachtung der Lebensdauern der Ladungsträger** im Vordergrund. Die Lebensdauer bzw. Rekombinationsrate von Elektron-Loch-Paaren im Quantenfilm bzw. Quantendraht wird durch den *quantum confined Stark effect* (QCSE) beeinflusst. Der QCSE wurde im Zusammenhang mit dem Absorptionsverhalten in Quantenfilmen entdeckt, die einem elektrischen Feld  $\vec{\mathcal{E}}$  parallel zur Wachstumsrichtung ausgesetzt waren [81]. Unter Einfluss des elektrischen Feldes wird die Absorptionskante zu niedrigeren Energien verschoben. Im hier diskutierten Fall muss die räumliche Separation von Elektron- und Lochwellenfunktion (Enveloppenfunktion) durch den Einfluss des elektrischen Feldes in der Struktur in Bezug auf die Rekombinationswahrscheinlichkeit berücksichtigt werden. Hierzu sind in Abb. 4.23 die Funktionen  $\phi_e(z)$  und  $\phi_{hh}(z)$  der Ladungsträger für zwei verschiedene Quantenfilmdicken gezeigt. Die Funktionen wurden numerisch berechnet [82], wobei ein elektrisches Feld von  $\mathcal{E} = 40$  kV/cm (internes Feld der Diode) zugrunde gelegt wurde. In Abb. 4.23(a) ist das Bänderschema des Quantenfilms zusammen mit den berechneten Enveloppenfunktionen gezeigt. In diesem Fall ist ein noch hinreichend großer Überlapp der Elektronen- und Lochwellenfunktionen zu erkennen. Das Quantendrahtgebiet wurde zur Vereinfachung als Quantenwellgebiet angenommen, dessen Dicke nach [77] in etwa dem doppelten Wert des Quantenfilms entspricht. Anhand der Wellenfunktionen in Abb. 4.23(b) ist zu sehen, dass der Überlapp zwischen Elektronen- und Lochwellenfunktion im Quantendrahtgebiet



**Abbildung 4.24:** Berechnete Abhängigkeit des Überlappverhältnisses  $r_{\text{QCSE}}$  (Gl. 4.29) von der elektrischen Feldstärke.

gegenüber dem in Abb. 4.23(a) deutlich geringer ausfällt. Eine quantitative Berechnung des Überlappverhältnisses

$$r_{\text{QCSE}} = \frac{\left| \int_{\text{QWR}} \phi_e(z) \phi_{hh}(z) dz \right|^2}{\left| \int_{\text{QW}} \phi_e(z) \phi_{hh}(z) dz \right|^2} \quad (4.29)$$

konnte durch numerische Integration der Produkte der in Abb. 4.23 gezeigten Enveloppenfunktionen durchgeführt werden. Da der Dipoloperator nur auf die Bloch-Funktionen des Leitungs- und Valenzbands wirkt, ist er in den Matrixelementen von Gl. 4.29 nicht enthalten. In derselben Weise wurde  $r_{\text{QCSE}}$  für weitere elektrische Feldstärken berechnet und in Abb. 4.24 graphisch aufgetragen. Im Flachbandfall (0 kV/cm) liegt erwartungsgemäß ein Überlappverhältnis von  $r_{\text{QCSE}} = 1$  vor. Bei Erhöhung der Feldstärke fällt  $r_{\text{QCSE}}$  exponentiell ab. Für den in Abb. 4.23 dargestellten Fall mit der Feldstärke  $\mathcal{E} = 40$  kV/cm findet sich ein Wert von  $r_{\text{QCSE}} = 0,024$ .

Dieses Ergebnis stützt die folgende Diskussion. Im Quantenfilm bzw. Quantendraht angeregte Elektron-Loch-Paare können aufgrund des Confinements nicht durch das elektrische Feld getrennt werden. Innerhalb des Quantenfilms bzw. Quantendrahts verschieben sich jedoch die Schwerpunkte der Wellenfunktionen der Elektronen und Löcher entsprechend dem QCSE. Im Vergleich zum Quantenfilm ist diese Separation im Quantendrahtgebiet wegen der räumlichen Aufweitung in  $z$ -Richtung wesentlich stärker ausgeprägt. Dadurch besitzen im Quan-

tendraht angeregte Ladungsträger eine höhere Lebensdauer als im Quantenfilm:

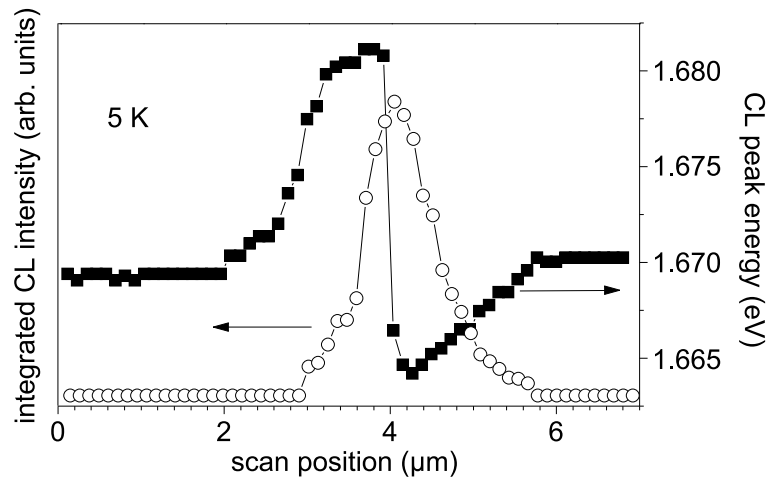
$$\tau_{\text{tot}}^{\text{QWR}} > \tau_{\text{tot}}^{\text{QW}} \quad \forall r_{\text{QCSE}} < 1. \quad (4.30)$$

Unter Einwirkung des elektrischen Feldes entsteht eine Bandverbiegung in  $z$ -Richtung (siehe Abb. 4.23). Elektronen und Löcher besitzen eine endliche Wahrscheinlichkeit, aus dem Quantenfilm bzw. Quantendraht durch die Potenzialbarriere zu tunneln und ein (positives) Photostromsignal zu erzeugen. In Verbindung mit der geringeren Rekombinationswahrscheinlichkeit und daher höheren Lebensdauer der Ladungsträger im Quantendraht resultiert aus diesem Gebiet ein gegenüber dem Quantenfilm erhöhter Tunnelstrom und demnach ein stärkeres Photostromsignal. Für  $\mathcal{E} \rightarrow 0$  kV/cm sinkt die Tunnelwahrscheinlichkeit bei gleichzeitig wachsendem Überlapp der Wellenfunktionen. Der Betrag des generierten positiven Photostroms und die Breite der räumlichen Photostrommaxima (Streifen) nehmen ab [Abb. 4.18(b) und (c)]. Die Anregung mit  $h\nu_{\text{exc}} = 1,83$  eV [Abb. 4.18(c)] ergibt gegenüber  $h\nu_{\text{exc}} = 1,91$  eV eine geringere Tunnelwahrscheinlichkeit bei gleichem elektrischen Feld. Dadurch ist das Signal in Abb. 4.18(c) schwächer als in Abb. 4.18(b) (vgl. z. B.  $U_{\text{LED}} = 0,0$  V).

Der Ladungsträgertransport innerhalb des Quantenfilms bzw. Quantendrahts ist durch ambipolare Diffusion, d. h. die gemeinsame Bewegung von Elektronen und Löchern in einer neutralen Ladungsträgerwolke, bestimmt. Die **Diffusionslänge** wächst proportional zur Quadratwurzel der Lebensdauer:  $L = \sqrt{D\tau_{\text{tot}}}$ . Die Lebensdauer erhöht sich, wenn der Überlapp der Elektronen- und Lochwellenfunktionen aufgrund wachsender elektrischer Feldstärke sinkt. Damit kann die Breite des räumlichen Maximums des Photostromsignals entlang des Quantendrahtverlaufs erklärt werden. Innerhalb der jeweilig vorherrschenden Diffusionslänge angeregte Elektron-Loch-Paare haben die Möglichkeit, in den Quantendraht zu gelangen und dort eine Ladungsträgerakkumulation zu bewirken, wodurch wiederum das Photostromsignal ansteigt. Im räumlichen Bild erscheint der Quantendraht dadurch breiter.

Die **räumlich rechtsseitige Verschiebung** des Photostromsignals gegenüber der detektierten EL steht möglicherweise in Zusammenhang mit dem tatsächlichen Potenzialverlauf beim Übergang zwischen Quantenfilm und Quantendraht. In CL-Messungen an ähnlichen Quantendrahtstrukturen haben Jahn *et al.* [83] einen asymmetrischen Potenzialverlauf senkrecht zum Quantendraht (in Quantenfilmebene) nachgewiesen. In Abb. 4.25 ist die CL-Energie in Abhängigkeit von der Position in einem senkrecht zum Quantendrahtverlauf geführten Linienscan gezeigt. Auf der linken Seite des Quantendrahtes (Position markiert durch CL-Maximum) tritt eine Potenzialbarriere auf, während auf der rechten Seite eine Potenzialabsenkung (Potenzialminimum) festgestellt werden kann. Demnach kann bei den hier diskutierten Messungen argumentiert werden, dass ein Ladungsträgereinfang in den Quantendraht bevorzugt aus einer Richtung stattfindet, der im Zusammenspiel mit der Diffusionslänge zu einer rechtsseitigen Verschiebung des Photostromsignals führt.





**Abbildung 4.25:** Variation der CL-Energie in einem senkrecht zum Quantendraht geführten Linienscan ( $\square$ ). Die Lage des Quantendrahtes ist durch das Maximum der integralen Quantendraht-CL gekennzeichnet ( $\circ$ ). Aus [83].

Durch Anregung mit einer Photonenenergie  $h\nu_{\text{exc}} = 1,65 \text{ eV}$  ( $h\nu_{\text{EL}}^{\text{QWR}} < h\nu_{\text{exc}} < h\nu_{\text{EL}}^{\text{QWR}}$ ) werden ausschließlich Ladungsträger im Quantendrahtgebiet erzeugt. Wegen der verringerten Absorptionsrate gegenüber den oben diskutierten Messungen ist das Photostromsignal des Quantendrahtes sehr schwach [siehe Abb. 4.20(a)]. Es ergeben sich zwei interessante Aspekte. Erstens gibt die Breite des Streifens in Abb. 4.20(a) ( $\approx 350 \text{ nm}$ ) die räumliche Auflösung der optischen Anregung durch die unbedampfte Nahfeldsonde in der Tiefe von etwa  $340 \text{ nm}$  unterhalb der Probenoberfläche an. Zweitens wird auf die Ähnlichkeit zwischen den räumlichen Verteilungen des Photostromsignals [Abb. 4.20(a)] und der Quantendraht-EL [Abb. 4.20(b)], die jeweils ein Maximum am unteren Bildrand besitzen, hingewiesen. Hierbei handelt es sich um ein Einschlussgebiet innerhalb des Quantendrahtes. Das Verhalten des Photostromsignals kann adäquat der obigen Betrachtung des Überlapps der Elektronen- und Löcherwellenfunktionen erklärt werden. Das starke EL-Signal ist auf den Einfang von Elektronen und Löchern des Injektionsstromes innerhalb des Quantendrahtes zurückzuführen.

## 4.4 Ergebnisse der Untersuchungen

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde das Verfahren der orts aufgelösten optischen Nahfeldspektroskopie an niederdimensionalen Systemen aus GaAs/(Al,Ga)As angewandt. Die Nahfeldsonden bestanden aus unbedampften, geätzten Lichtleitfaserspitzen, die mit einer Auflösung von  $200\text{--}250 \text{ nm}$  bei gleichzeitig hoher Transmission arbeiten. Der Einsatz dieser Sonden im SNOM ist mit einer langen Standzeit verbunden und erleichtert damit die Handhabung des Experiments. Das in Kap. 3 vorgestellte Tieftemperatur-SNOM ergänzt in wirkungs-



voller Weise die spektroskopischen Methoden der Kathodolumineszenz und der  $\mu$ -PL zur Untersuchung an Halbleiter-Heterostrukturen.

Im ersten Teil der Untersuchungen wurden GaAs-Quantenfilme mit einer AlAs/GaAs-Übergitterbarriere betrachtet. Die im Aufbau identischen Proben wurden jeweils unter veränderten Wachstumsbedingungen der Grenzflächenschichten hergestellt. Ohne Wachstumsunterbrechung bilden sich rauhe Grenzflächenprofile, die eine inhomogen (gaußförmig) verbreiterte PL-Emission nach sich ziehen. Durch Wachstumsunterbrechung an den jeweils den Grenzflächen nächstliegenden GaAs-Schichten konnte eine Dickenfluktuation des Quantenfilms von  $\pm 1$  Monolagen erreicht werden. Die PL zeigt hier eine typische Monolagenaufspaltung in drei Linien. Mittels orts aufgelöster optischer Nahfeldspektroskopie im Illuminations-/Kollektionsmodus konnte die räumliche Verteilung der Gebiete konstanter Quantenfilmdicke sichtbar gemacht werden. Die Messungen geben interessante Einblicke in die Wachstumsprozesse von Schichten im GaAs/(Al,Ga)As-System. Die Ergebnisse der Untersuchungen sind:

- Es treten  $(n - 1)$ - bzw.  $(n + 1)$ -ML-Inseln mit einem Durchmesser von etwa  $1 \mu\text{m}$  auf.
- Die optischen Nahfelddbilder sind zueinander komplementär.
- Die Spektren zeigen mitunter eine Doppelmonolagenaufspaltung.
- Die optischen Nahfelddbilder konnten anhand eines Modells, das das 2DN-Wachstum der Inseln im Zusammenhang mit der Breite der Terrassen berücksichtigt, erklärt werden.
- Es gibt keine Korrelation zwischen den Merkmalen der Oberflächentopographie und der räumlichen Verteilung der PL-Intensitäten.

Im zweiten Teil wurden GaAs/(Al,Ga)As-Quantendrähte untersucht, die in der intrinsischen Zone einer  $p$ - $i$ - $n$ -Diode (LED) eingebaut sind. Die Quantendrähte waren mittels Überwachsen einer mit streifenförmigen Mesen versehenen GaAs(311)-Oberfläche durch einen Quantenfilm hergestellt worden. Beim Betrieb der LED wird eine verstärkte Elektrolumineszenz aus dem Quantendrahtgebiet gegenüber dem umgebenden Quantenfilm beobachtet. Mittels orts aufgelöster Photostromanregung konnte der Beitrag von Testströmen in der Struktur in Abhängigkeit von Wellenlänge und angelegtem äußeren elektrischen Feld gemessen werden. Die Injektion erfolgte sowohl an der Spaltkante einer senkrecht zum Verlauf des Quantendrahtes gebrochenen Mesa sowie durch die Probenoberfläche. Die Ergebnisse der Untersuchungen sind:

- Es wurden keine Strompfade senkrecht zur Quantenfilmebene nachgewiesen.
- Bei selektiver Anregung von Elektron-Loch-Paaren in der Quantenfilmebene durch die Probenoberfläche wurde ein stärkeres Photostromsignal aus dem Quantendrahtgebiet im Vergleich zum umgebenden Quantenfilm beobachtet. Der Effekt wurde unter Betrachtung des *quantum confined* Stark-Effekts diskutiert.

- Die Breite der räumlichen Maxima des Photostromsignals hängt von der Diffusionslänge im Quantenfilm (hohes elektrisches Feld  $\rightarrow$  lange Lebensdauer  $\rightarrow$  große Diffusionslänge) ab.
- Die Verschiebung des Photostrommaximums gegenüber des EL-Maximums senkrecht zum Quantendrahtverlauf in der Quantenfilmebene kann durch einen asymmetrischen Potenzialverlauf erklärt werden.

# Kapitel 5

## MnAs/GaAs-Ferromagnet-Halbleiter-Hybridsysteme

### 5.1 Einleitung

Ein derzeit wichtiges Forschungsgebiet in der Festkörperelektronik ist die Realisierung spin-polarisierten Transports in Halbleiterbauelementen. Dieses Gebiet schließt an die Entwicklung der Magnetoelektronik an und wird im neueren Sprachgebrauch auch als Spintronik bezeichnet. Die theoretischen Grundlagen der Spintronik liegen in der quantenmechanischen Beschreibung der Teilchenzustände, insbesondere in der Beschreibung durch die Spinquantenzahl. Letztlich aber verdankt sie ihren Durchbruch den neuen Herstellungstechnologien von (maßgeschneiderten) Materialien [1]. Als Geburtsstunde der Spintronik kann man die Entdeckung des riesigen Magnetowiderstandes (engl. *giant magnetoresistance*, GMR) in Stapeln dünner Schichten von magnetischen und nicht-magnetischen Metallen mit alternierender Folge ansehen [84, 85]. Der Widerstand eines solchen Stapels hängt entscheidend von der magnetischen Polarisierung der ferromagnetischen Schichten ab und kann um zwei Größenordnungen variieren. Damit erhält man ein einfaches Bauelement, in dem der Stromtransport spinabhängig wird.

In der Forschung und Entwicklung neuer magnetoelektronischer Bauelemente lassen sich derzeit zwei Grundrichtungen erkennen: die Informationsspeicherung und die Informationsverarbeitung. Für letztere besteht eine einfache Motivation darin, dass das Informationsquantum *bit* mit der zusätzlichen Information *spin up* ( $\uparrow$ ) oder *spin down* ( $\downarrow$ ) belegt wird. So können digital verschlüsselte Informationen, im allgemeinen Zahlen, sozusagen indiziert werden. Zum Beispiel kann man mit der Zahl 15, die ja binär als 1111 dargestellt wird, noch einmal eine Zahl zwischen 0 und 15 verschlüsseln durch die Wahl einer Kombination aus spin-up- oder spin-down-Zuständen ( $\downarrow\downarrow\downarrow\downarrow$ ,  $\uparrow\downarrow\downarrow\downarrow$ ,  $\downarrow\uparrow\downarrow\downarrow$  ... usw.). Die Möglichkeiten der Spintronik sind damit jedoch nicht erschöpft, sondern werden im Gegenteil besonders interessant beim Einsatz von ferromagnetischen bzw. spinabhängigen Einzelelektronentransistoren (engl. *ferromagnetic single electron transistor*, FSET oder *spin SET*). Hier öffnet sich ein weites Feld für die zukünftige

technische Umsetzung der sogenannten Quanten-Informationsverarbeitung oder kurz Quanten-Kommunikation.

Der Erfolg einer auf der Grundlage der Spintronik arbeitenden Datenverarbeitung wäre zweifelsohne eine erhöhte Prozessgeschwindigkeit durch Parallelverschlüsselung und -verarbeitung von Information. Bei der innerhalb der nächsten zwei Dekaden prognostizierten Stagnation der Leistungsfähigkeit von Si-Prozessoren [86] stellt die Spintronik also durchaus eine Möglichkeit dar, die Grenze heutiger Technologien zu durchbrechen. Daneben gibt es weitere interessante Aspekte der Spintronik, wie zum Beispiel die der Quanten-Kryptographie [87].

Um Schaltprozesse in spintronischen Halbleiterbauelementen zu ermöglichen, müssen zunächst einmal spin-polarisierte Ladungsträger im Material erzeugt bzw. in dieses injiziert werden. Die letztere Variante, die Spininjektion, beruht auf der Kombination eines Halbleiters mit einem ferromagnetischen Metall im Schichtaufbau als Hybridstruktur. Im magnetisierten Metall werden die Spins der Elektronen ausgerichtet, und durch Anlegen einer Spannung an die gesamte Hybridstruktur können diese in den Halbleiter gelangen. Für die Forschung ergibt sich die Fragestellung nach geeigneten Materialkombinationen. Zum Einen ist es wichtig, dass das Schichtsystem epitaktisch herstellbar ist, zum Anderen ist die Qualität der Grenzfläche zwischen beiden Materialien von hoher Bedeutung. Darüber hinaus wird die Auswahl geeigneter Materialien durch die Bedingung begrenzt, dass die Curie-Temperatur des Ferromagneten entsprechend hoch sein muss, um Spininjektion auch bei Raumtemperatur zu ermöglichen. Generell erstreckt sich die Auswahl der magnetischen Materialien über ferromagnetische Elemente und Legierungen der Eisengruppe (Fe, Co, Ni), antiferromagnetische Verbindungen (z. B.  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, NiMn, NiO, FeMn), ferromagnetische Metalloxide (z. B. CrO<sub>2</sub>), Halbmetalle (z. B. die Heusler-Legierungen wie NiMnSb) bis hin zu ferromagnetischen Halbleitern (hier insbesondere Mn-legiertes GaAs) [88]. Als Halbleitermaterial wird üblicherweise GaAs bzw. die ternären Verbindungen  $X_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  (X = Al, In) bevorzugt.

Spininjektion bei Raumtemperatur wurde unlängst für das Hybridsystem Fe/GaAs nachgewiesen [89]. Hierzu wurde ein (In,Ga)As/GaAs Quantenfilm in eine GaAs-LED-Struktur eingebaut. An der Grenzfläche vom Galliumarsenid zum Eisen bildet sich eine Schottkybarriere aus, die von den durch Anlegen eines äußeren Magnetfeldes spinpolarisierten Elektronen aus dem Eisen durchtunnelt werden kann. Der Nachweis der Spininjektion wird über die Abhängigkeit der (zirkularen) Polarisation der Quantenfilm-EL vom angelegten Magnetfeld geführt.

Ebenso erfolgreich konnte der Nachweis der Spininjektion für das Ferromagnet-Halbleiter-Hybridsystem MnAs/GaAs nachgewiesen werden. Für spintronische Anwendungen ist das System MnAs/GaAs aus folgenden Gründen sehr interessant:

- Das epitaktische Wachstum von MnAs auf GaAs im Standard-MBE-Verfahren ist gut beherrscht und liefert thermisch stabile Schichten.
- Die Curie-Temperatur oder ferromagnetische Übergangstemperatur von MnAs liegt mit  $T_C \approx 40^\circ\text{C}$  oberhalb der Raumtemperatur.
- Die Grenzfläche zwischen MnAs und GaAs stellt einen nahezu atomar scharfen Übergang dar.
- Entlang der leichten magnetischen Achse weisen die MnAs-Schichten eine hohe Remanenz (nahe dem Sättigungswert  $M_s$ ) bei geringer Koerzitivfeldstärke (50 Oe) auf.

Im nächsten Abschnitt wird speziell auf die morphologischen Eigenschaften von epitaktischem MnAs auf der GaAs(001)-Oberfläche eingegangen. Dabei soll insbesondere das interessante Phänomen einer Phasenkoexistenz in der elastisch verspannten MnAs-Schicht in einem Temperaturbereich zwischen  $T_C$  und etwa  $+10^\circ\text{C}$  im Mittelpunkt stehen, welches zu einer streifenförmigen, periodisch alternierenden Anordnung von ferromagnetischem  $\alpha$ -MnAs und paramagnetischem  $\beta$ -MnAs führt. Diese Struktur kann durch temperaturabhängige Rasterkraftmikroskopie direkt nachgewiesen werden. Daran schließt sich ein Abschnitt an, in dem mittels magnetischer Rasterkraftmikroskopie die Entwicklung und Struktur der magnetischen Domänen der ferromagnetischen  $\alpha$ -MnAs-Phase innerhalb dieses Temperaturbereichs aufgeklärt wird. Zum Schluss wird ein Ausblick gegeben, wie diese elastischen Verspannungen die elektronischen Eigenschaften eines darunterliegenden Quantenfilmes beeinflussen könnten.

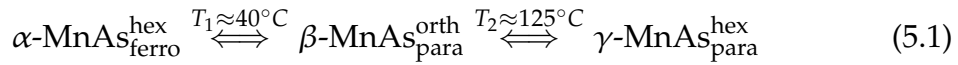
## 5.2 Strukturelle Untersuchungen

### 5.2.1 Kristallographische und epitaktische Eigenschaften

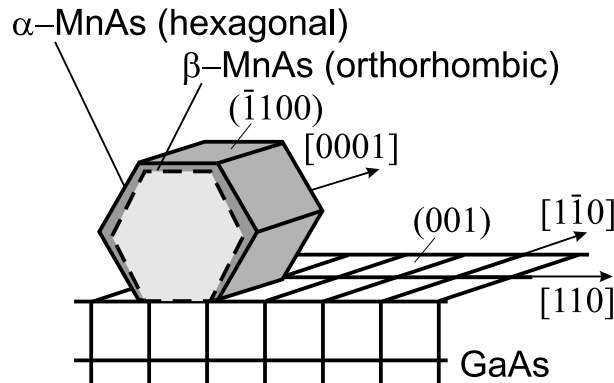
In diesem Abschnitt werden zunächst die strukturellen Eigenschaften des MnAs-Volumenkristalls behandelt, die in der Literatur hinreichend dargestellt sind [90, 91]. Im Anschluss sollen die speziellen Eigenschaften der Epitaxie von MnAs auf der GaAs(001)-Oberfläche erläutert werden, die den Arbeiten von M. Tanaka entnommen sind [92, 93, 94, 95].

Die kristallographische Struktur des MnAs ist durch drei verschiedene Phasen gekennzeichnet. Der erste Umwandlungspunkt liegt bei einer Temperatur von  $T_1 \approx 40^\circ\text{C}$ , unterhalb derer die ferromagnetische Phase ( $\alpha$ -MnAs) existiert. Das Kristallgitter von  $\alpha$ -MnAs ist hexagonal. Bei Erwärmung über  $T_1$  wandelt sich der Kristall in die paramagnetische  $\beta$ -Phase ( $\beta$ -MnAs) um, wobei das hexagonale Kristallgitter in eine orthorhombische Struktur übergeht. Da der Phasenübergang bei  $T_1$  gleichzeitig den Übergang vom ferromagnetischen in den paramagnetischen Zustand darstellt, wird dieser Temperaturpunkt in den folgenden Betrachtungen als Curie-Temperatur bezeichnet:  $T_1 = T_C$ . Bei der Temperatur  $T_2 \approx$

125°C erfolgt ein weiterer Phasenübergang zum (paramagnetischen)  $\gamma$ -MnAs, dessen Kristallstruktur wieder hexagonal ist:

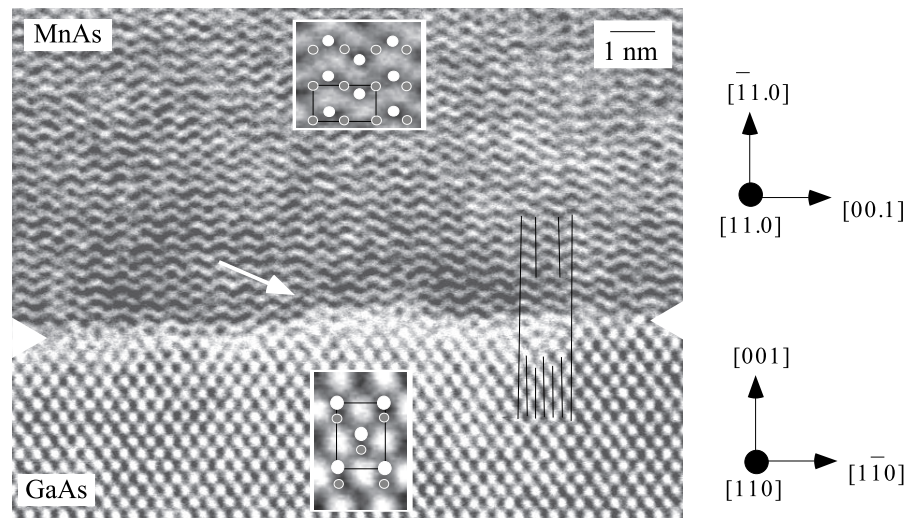


Der Übergang bei  $T_C$  ist ein Phasenübergang erster Ordnung. Dabei schrumpft die Einheitszelle in der hexagonalen Ebene um ca. 1,2%, während sich die Höhe (c-Achse) nicht verändert. Die orthorhombische Verzerrung der Einheitszelle beim  $\beta$ -MnAs ist sehr klein und beträgt weniger als 0,2 % [96]. Vgl. hierzu Abb. 5.1. Die Änderung des Gitterparameters  $a$  der hexagonalen Grundfläche bei  $T_C$  ist unstetig und mit einer Temperaturhysterese von ungefähr 15°C verbunden. Dieses für magnetische Phasenübergänge ungewöhnliche Verhalten wird durch die starke Magnetostraktion des MnAs erklärt [97].



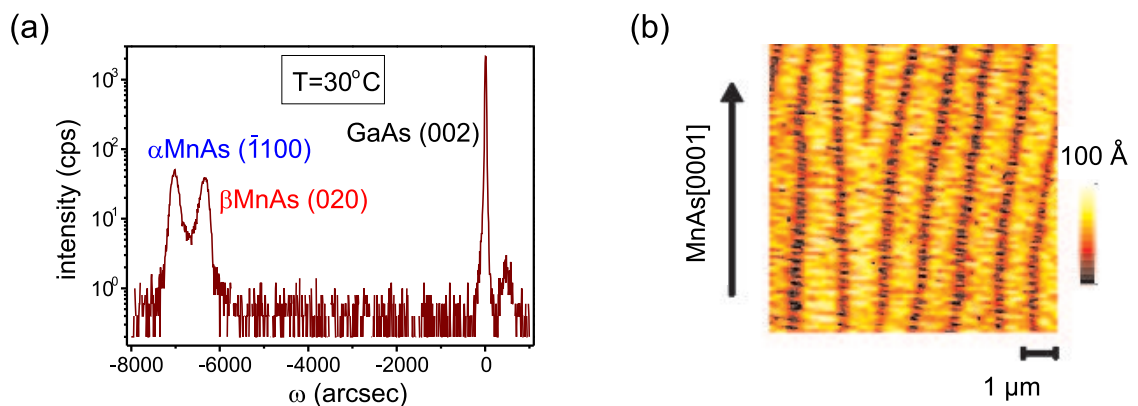
**Abbildung 5.1:** Epitaktische Orientierung des MnAs auf der GaAs(001)-Oberfläche. Bei  $T_C \approx 40^\circ\text{C}$  schrumpft die Grundfläche des hexagonalen Prismas sprunghaft um 1,2%. Die Ausdehnung der Einheitszelle in MnAs[0001] hingegen ist stetig.

Das epitaktische Wachstum von MnAs auf GaAs(001) erfolgt derart, dass die Seitenfläche  $(\bar{1}100)$  des MnAs-Prismas auf der GaAs(001)-Fläche aufliegt. Die c-Achse MnAs[0001] ist dabei parallel zu GaAs[ $\bar{1}10$ ] ausgerichtet (vergl. Abb. 5.1). Bei Wachstum auf GaAs(001)-A-Oberflächen ist die Orientierung der MnAs-Schicht in Bezug auf das Substrat eindeutig. Trotz großer Gitterfehlانpassung in Richtung MnAs[0001] (ca. 33%) ist ein stabiles epitaktisches Wachstum möglich. TEM-Untersuchungen (Abb. 5.2) haben gezeigt, dass die Fehlanpassung an der Grenzfläche durch die Bildung eines Koinzidenzgitters gemildert wird, bei der jede sechste GaAs{220}-Ebene auf jede vierte MnAs{0002}-Ebene passt [98, 101]. Die verbleibende Gitterfehlانpassung beträgt dann nur noch 5% und senkrecht dazu, entlang MnAs  $[11\bar{2}0]$ , 7,7%. Unter diesen Verhältnissen ist stabiles Wachstum möglich, und die Anpassung der Gitter wird durch eine regelmäßige Anordnung von Fehlanpassungsversetzungen erreicht. Das Wachstum der hier betrachteten Schichten mittels MBE erfolgt bei 250°C auf einer 100 nm GaAs Pufferschicht mit einer Geschwindigkeit von 20 nmh<sup>-1</sup> ohne nachfolgendes Tempern. Im Gegensatz zum Volumenkristall wurde für epitaktische MnAs-Schichten auf GaAs(001) ein qualitativ unterschiedliches Verhalten beim ferromagnetischen



**Abbildung 5.2:** TEM-Aufnahme der Grenzfläche zwischen MnAs( $\bar{1}100$ ) und GaAs(001). Aus [98]. Die Aufnahme lässt ein  $4 \times 6$  Koinzidenzgitter erkennen, durch das die Gitterfehlانpassung von 33% auf 5% reduziert wird.

Phasenübergang  $T_C$  festgestellt. Anstelle des abrupten, vollständigen Übergangs ko-existieren die Phasen  $\alpha$ -MnAs und  $\beta$ -MnAs über einen weiten Temperaturbereich bis zu  $30^\circ\text{C}$  unterhalb  $T_C$ . Dies zeigte sich zunächst in den Beugungsspektren der Röntgenstrukturanalyse, wie Abb. 5.3(a) zeigt [99]. Durch Auswertung der Intensitäten der Beugungspeaks wurde ein weitestgehend linearer funktionaler Zusammenhang zwischen dem Phasenanteil und der Temperatur ermittelt. Aus dem Auftreten zweier deutlich getrennter Reflexe wurde gefolgert, dass die Breite der Domänen hinreichend groß sein muss, da bei eng stehenden Domänen die unterschiedlichen Gitterkonstanten 'interferieren' und sich somit ausmitteln würden. In AFM-Aufnahmen bei Raumtemperatur wurden erste Hinweise auf die räumliche Verteilung der beiden Phasen gefunden [Abb. 5.3 (b)]. Dies lieferte



**Abbildung 5.3:** (a) Röntgenbeugungsbild einer 250 nm dicken MnAs-Schicht aus [99]. (b) AFM-Aufnahme einer MnAs-Schicht bei Raumtemperatur aus [100].



die Motivation für die Ausarbeitung eines theoretischen Modells zur Beschreibung periodischer elastischer Domänen zweier Phasen, deren Koexistenz lediglich durch die Verspannung der epitaktischen Schicht begründet ist.

### 5.2.2 Verspannungsinduzierte Phasenkoexistenz: Modell periodischer elastischer Domänen

Die folgenden Ausführungen sollen das theoretische Modell periodischer elastischer Domänen koexistierender Phasen in seinen wesentlichen Zügen abhandeln. Es wurde von V. M. Kaganer ausgearbeitet und unter dem Titel *Strain-mediated phase coexistence in heteroepitaxial films: An x-ray diffraction study* zur Veröffentlichung eingereicht [102].

Grundsätzlich entsteht eine konstante Verspannung in der epitaktischen Schicht, da die laterale Ausdehnung durch das Substrat fixiert wird. Es lässt sich nun aus rein energetischen Gründen ableiten, dass unter der Voraussetzung dieser elastischen Verspannung eine Phasenkoexistenz möglich ist (eine Beschränkung durch die Gibbs'sche Phasenregel entfällt unter solchen Bedingungen). Die speziellen Verhältnisse an den Grenzflächen zwischen Substrat und epitaktischer Schicht sowie zwischen den Domänen spielen in den energetischen Betrachtungen vorerst keine Rolle.

Wenn  $\xi$  der Anteil der  $\alpha$ -Phase und  $1 - \xi$  der Anteil der  $\beta$ -Phase ist, dann lässt sich die freie Energiedichte ausdrücken als

$$f = \xi(f_\alpha + E_\alpha) + (1 - \xi)(f_\beta + E_\beta), \quad (5.2)$$

wobei  $f_\alpha$  und  $f_\beta$  die freie Energiedichte der Phasen im unverspannten Zustand und  $E_\alpha$  und  $E_\beta$  die elastischen Energiedichten bezeichnen. Letztere werden durch die elastischen Dehnungstensoren  $\hat{e}_\alpha$  und  $\hat{e}_\beta$  ausgedrückt als

$$E_{(\alpha,\beta)} = Y \sum_{ij} \sum_{kl} e_{(\alpha,\beta)ij} e_{(\alpha,\beta)kl}, \quad (5.3)$$

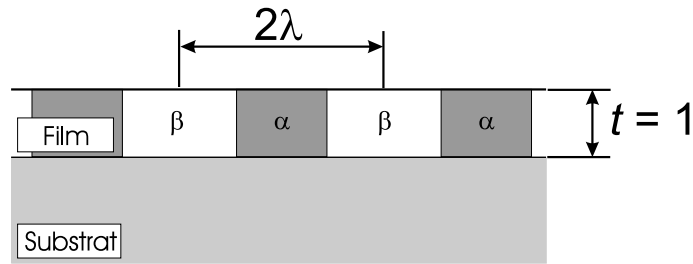
mit  $Y$  als modifizierter Young'scher Modul.

Einen zweiten Satz von Bestimmungsgleichungen erhält man durch die Bedingung, dass sich die totale Dehnung  $\hat{e}$  (mikroskopisch die relative Änderung der Atomabstände) der beiden Phasen in den ko-planaren Komponenten wegen der lateralen Fixierung der Schicht an das Substrat zu Null addiert:

$$\xi \epsilon_{\alpha ii} + (1 - \xi) \epsilon_{\beta ii} = 0, i = x \text{ oder } y. \quad (5.4)$$

Die totale Dehnung wird durch die elastische sowie durch die sog. interne Dehnung verursacht :  $\hat{e} = \hat{e} + \hat{\eta}$ . Als Quellen der internen Dehnung werden hier die thermische Ausdehnung sowie die Verformung der Einheitszelle beim Phasenübergang betrachtet. Diese sind in einem Dehnungstensor  $\hat{\eta}$  enthalten.

Zur Vereinfachung wird eine skalare Formulierung des Problems bevorzugt. Die Schicht wird als elastisch isotrop angenommen; die Tensoren werden auf nullte Stufe reduziert. Für die Phase  $\alpha$  gilt  $e_\alpha = \epsilon_\alpha$  (setzen  $\eta = 0$ ); für die Phase  $\beta$  gilt



**Abbildung 5.4:** Schematische Darstellung der Anordnung periodischer elastischer Domänen in der Schicht. Die Schichtdicke  $t$  ist der Skalierungsparameter, auf den sich alle Längen beziehen.

entsprechend  $e_\beta = \epsilon_\beta - \eta_0$  ( $\eta_0$  = interne Dehnung, hervorgerufen durch zweite Phase). Damit lässt sich die freie Energiedichte ausdrücken durch

$$f = \xi Y \epsilon_\alpha^2 + (1 - \xi) [\Delta f + Y(\epsilon_\beta - \eta_0)^2] \quad (5.5)$$

mit der Beschränkung

$$\xi \epsilon_\alpha + (1 - \xi) \epsilon_\beta = 0. \quad (5.6)$$

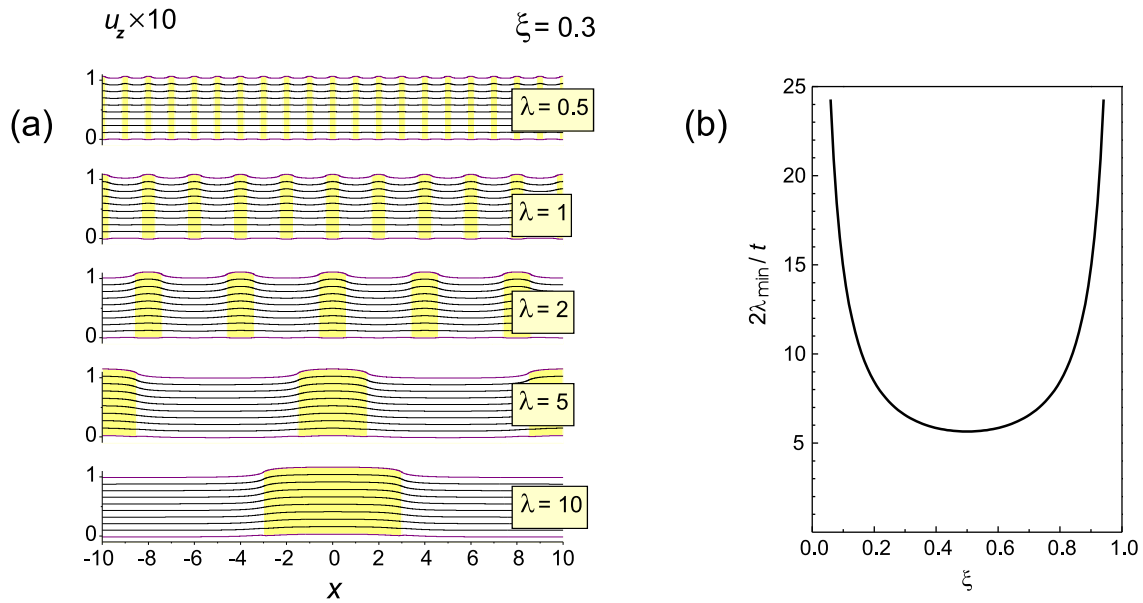
$\Delta f$  ist die Differenz der freien Energie bei Phasenumwandlung im Volumenkristall. Sie kann um den Umwandlungspunkt herum linear in der Temperatur entwickelt werden:  $\Delta f \propto (T - T_C)$ . Differenzieren von Gl. 5.5 nach  $\xi$  und Nullsetzen bringt letztlich zwei Gleichungen mit zwei Unbekannten. Nach Auflösung lässt sich für den Phasenanteil folgender Zusammenhang angeben

$$\xi = -\frac{\Delta f}{2Y\eta^2}. \quad (5.7)$$

Daraus lassen sich zwei Schlussfolgerungen ziehen: da alle Terme auf der rechten Seite von Gl. 5.7 endlich sind, gibt es eine endliche Grösse  $\xi$ , welche sich wegen  $\Delta f \propto (T - T_C)$  linear mit der Temperatur ändert. Die Bedingung  $0 \leq \xi \leq 1$  wiederum beschränkt den Temperaturbereich der Phasenkoexistenz.

Soweit es sich um energetische Betrachtungen handelte, wurde nur die prinzipielle physikalische Möglichkeit einer Koexistenz zweier Phasen in der MnAs-Schicht erklärt, jedoch keine Aussage über die räumliche Verteilung getroffen. Dazu wird zunächst angenommen, dass sich eine periodisch alternierende, streifenförmige Anordnung beider Phasen ausbildet. Im Schnitt durch die Schicht entspricht dies dem Schema in Abb. 5.4. Die Vermutung über eine solche Anordnung wird durch die im vorhergehenden Abschnitt erwähnten AFM-Bilder bei Raumtemperatur begründet.

Die Lösung des elastischen Problems für eine derartige Geometrie der Domänenanordnung bei frei wählbaren internen Dehnungstensoren ist in der Literatur angegeben worden [103, 104]. Sie besteht darin, eine periodische interne Dehnung durch eine Fourierreihe darzustellen und das elastische Spannungsgleichgewicht für jede Fourierkomponente zu bestimmen ( $\partial \sigma_{ij} / \partial x_j = 0$ ), wobei der Spannungstensor  $\hat{\sigma}$  in der Schicht durch die elastische Dehnung  $\hat{e}$  und im Substrat durch



**Abbildung 5.5:** (a) Graphische Darstellung der Lösung des elastischen Problems für verschiedene Perioden bei konstantem Phasenanteil  $\xi = 0.3$  ( $\lambda$  entspricht der halben Periode). (b) Universelle Kurve, die die Abhängigkeit der Domänenperiode vom Phasenanteil  $\xi$  beim Minimum der freien Energie in der Schicht zeigt [102].

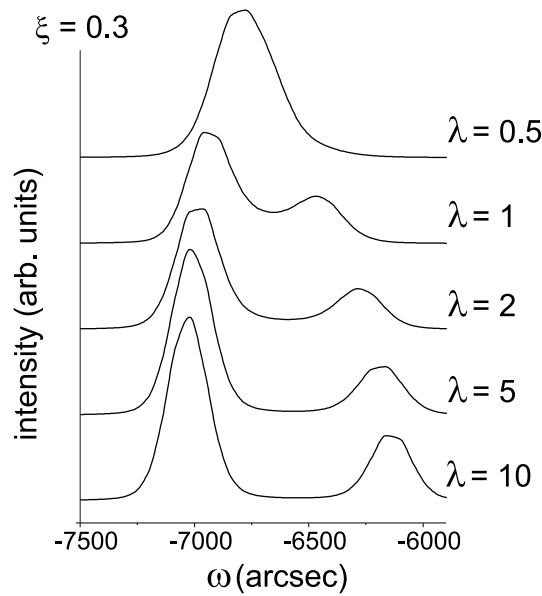
die totale Dehnung  $\hat{\epsilon}$  bestimmt wird. Es gibt drei Randbedingungen: a) an der freien Schichtoberfläche gibt es keine Zugspannung, b) an der Schicht-Substrat-Grenzfläche sind Zugspannung und elastische Verformung endlich und stetig, c) für  $z \rightarrow \infty$ , also tief im Substrat, verschwindet jegliche Spannung. Bei der Behandlung des Problems werden alle Längen in Einheiten der Schichtdicke  $t$  ausgedrückt. Im Ergebnis erhält man einen Ausdruck für die Verschiebung der Schichtelemente in Richtung der Schichtnormale ( $z$ -Richtung) in Abhängigkeit vom Ort  $x$  und Tiefe  $z$  in der Schicht:

$$u_z(x, z) = \frac{\eta}{1 - \nu} \left[ (1 - \xi)z + \sum_{n=1}^{\infty} c_n \frac{(-1)^n}{\pi n} \sin(\pi n x) \cos \frac{\pi n z}{\lambda} \right] \quad (5.8)$$

mit den Koeffizienten

$$\begin{aligned} c_n &= a_n \exp \left[ - (1 - \xi) \frac{\pi n}{\lambda} \right] - \frac{\lambda}{\pi n} \exp \left( - z \frac{\pi n}{\lambda} \right) \\ a_n &= 2 + 4(1 - \nu) \frac{\lambda}{\pi n} - \left( (3 - 4\nu) \frac{\lambda}{\pi n} + 2 \right) + 2z(e^{-\pi n/\lambda} - 1) \end{aligned} \quad (5.9)$$

( $\nu$  = Poissonzahl). In Abb. 5.5 (a) ist die elastische Verformung  $u_z$  bei einem Phasenanteil von  $\xi = 0.3$  für verschiedene Perioden  $2\lambda$  dargestellt. Zur Bestimmung der Periode muss man wiederum ein Minimum der freien Energie errechnen,



**Abbildung 5.6:** Theoretische Berechnung der Röntgenbeugungspeaks nach Gl. 5.11 [102].

wobei Gl. 5.5 durch einen Zusatzterm der Form

$$E_d = 2Y\eta^2 \sum_{n=1}^{\infty} \left[ 1 - \frac{2\lambda}{\pi n} (1 - e^{-\pi n/\lambda})^2 \frac{\sin^2(\pi n \xi)}{(\pi n)^2} \right] \quad (5.10)$$

ergänzt wird, der sich aus der Verschiebung  $u_z$  berechnen lässt. Somit findet man für jeden Wert von  $\xi$  eine Periode  $2\lambda$ , die dem Minimum der freien Energie in der Schicht entspricht. Die Werte fallen auf eine universelle Kurve, wie sie in Abb. 5.5 (b) dargestellt ist. Die Domänenperiode hat ein Minimum von  $2\lambda/t = 5.65$ , wenn die Anteile beider Phasen gleich sind. Sie divergiert, wenn der Anteil einer jeweiligen Phase gegen 1 strebt.

Mittels der angenommenen periodischen Domänen lassen sich die Daten aus den Röntgenbeugungsmessungen auswerten, wenn man die der Röntgenbeugungstheorie zu Grunde liegende kinematische Streuformel

$$I(q_x, q_z) = \int \exp[i\vec{Q} \cdot \vec{u}(x, z) + i(q_x x + q_z z)] dx dz \quad (5.11)$$

anwendet und die vertikale Verschiebung in der Schicht  $u_z$  aus Gl. 5.8 bzw. 5.9 für das Vektorfeld  $\vec{u}(x, z)$  einsetzt. Die Integration erstreckt sich hier über die gesamte Schichtdicke in  $z$ -Richtung und über eine Domänenperiode  $2\lambda$ . In Abb. 5.6 sind Beispiele derartiger simulierter Röntgenbeugungsspektren für  $\xi = 0, 3$  und verschiedene Werte  $\lambda$  gezeigt. Durch Anpassung von  $I(q_x, q_z)$  an die realen Intensitätsverhältnisse und Lage der beiden Streureflexe lassen sich der Phasenanteil  $\xi$  und die Domänenperiode  $\lambda$  ermitteln. Auf die Ergebnisse dieser Datenauswertung wird im folgenden Abschnitt zurückgegriffen werden, wenn temperaturabhängige AFM-Messungen durch Vergleich mit ihnen auszuwerten sind.

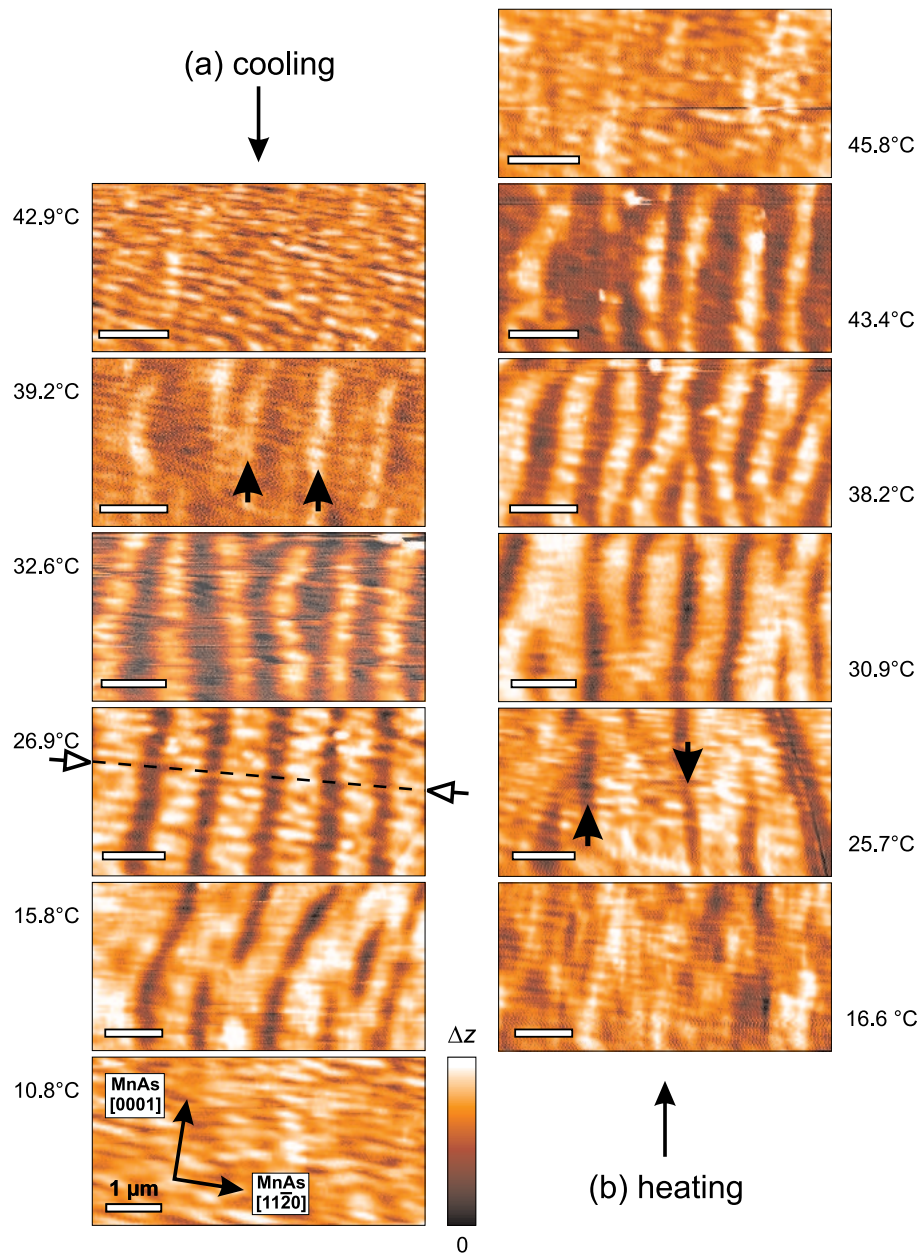
### 5.2.3 Direkter Nachweis der Phasenkoexistenz

Das theoretische Modell periodischer elastischer Domänen konnte zwar indirekt durch Röntgenmessungen bestätigt werden, jedoch konnten daraus keine Aufschlüsse über die tatsächliche räumliche Verteilung der Domänen gewonnen werden. Im Rahmen der in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen wurde mittels temperaturabhängigem AFM ein direkter Nachweis über die Entwicklung und räumliche Verteilung der Domänen im gesamten Temperaturbereich der Phasenkoexistenz erbracht. Für derartige Messungen bot sich das optische Rasternahfeldmikroskop (SNOM) als Topographie-Messgerät mit veränderlicher Messtemperatur an. Wie in Abschnitt 3.3 gezeigt wurde, zeichnet sich die Abstandsdetektion durch eine außerordentliche Höhenempfindlichkeit — bis hin zur Detektion einzelner Monolagen — aus. Da der Unterschied der Gitterkonstanten in  $z$ -Richtung zwischen  $\alpha$ -MnAs und  $\beta$ -MnAs ca. 1% der Schichtdicke beträgt und damit bei den verwendeten Proben mit  $t = 100$  bzw. 180 nm ein Höhenkontrast in der Größenordnung von mindestens 1 nm erwartet wurde, waren somit alle Voraussetzungen für die erfolgreiche Durchführung solcher Messungen erfüllt. Neben der guten  $z$ -Auflösung in der Oberflächentopographie war der geschlossene Aufbau des Mikroskops in einem Tieftemperatur-Kryostaten von Vorteil, weil somit eine gleichmässige Erwärmung aller Teile in der Probenkammer und somit stabiles Abrastern der Proben bei allen Temperaturen garantiert war. Ein Nachteil der Methode lag jedoch in der verhältnismässig langen Zeit zum Einstellen eines Temperaturschrittes und die Drift des Scanners, wodurch die Entwicklung der Topographie an ein und demselben Ort auf der Probenoberfläche leider nicht nachvollzogen werden konnte. Gleichzeitig veränderten sich natürlich auch die Resonanzeigenschaften des Schwingquarzes mit der Temperatur, so dass häufiges Nachregeln erforderlich war.

Als Sonden zum Abtasten der Oberfläche wurden HF-geätzte unbedampfte Glasfaserspitzen eingesetzt, da sie sich durch lange Haltbarkeit und hervorragende topographische Auflösung auszeichnen (vergl. Kap. 3, Abschnitt 3.3). Zum Erreichen von Temperaturen oberhalb der Raumtemperatur wurde der kryostateninterne Heizer verwendet; das Kühlen (unter Raumtemperatur) erfolgte mit flüssigem Stickstoff. Die Eichung des Scanbereiches erfolgte mit einer Teststruktur für verschiedene Temperaturen. Zu Beginn der Messungen wurden die Proben auf 55°C erwärmt, um sicherzustellen, dass eine vollständige Phasenumwandlung zur  $\beta$ -Phase in der Schicht vorliegt. Danach erfolgte eine langsame Abkühlung mit einer Rate von ca. 5°C pro Stunde mit Unterbrechungen an den Temperaturpunkten, an denen die Topographiebilder aufgenommen wurden.

Abbildung 5.7 zeigt die Entwicklung der Schichtoberfläche einer 180 nm dicken MnAs-Schicht in Abhängigkeit von der Temperatur beim Durchfahren eines kompletten Zyklus. Zunächst fallen kleine, längliche morphologische Merkmale auf, die sich entlang MnAs[11 $\bar{2}$ 0] erstrecken. Dies sind die Facetten einer Vizinalfläche mit symmetrisch verkippten Seiten in Richtung  $[h\bar{h}0l]$  bzw.  $[h\bar{h}0\bar{l}]$ . Unterhalb der kritischen Temperatur  $T_C \approx 40^\circ\text{C}$  werden diese Strukturen von einer zweiten überlagert. Es erscheinen zunächst recht unregelmässige längliche Erhebungen, die entlang MnAs[0001] orientiert sind. Bei weiterer Abkühlung schliessen die





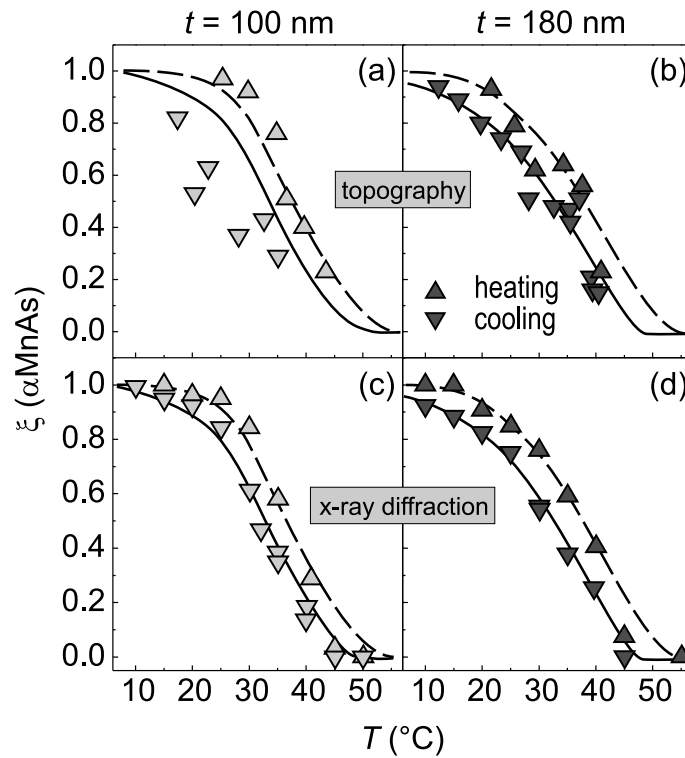
**Abbildung 5.7:** Oberflächentopographie einer 180 nm dicken MnAs Schicht auf GaAs(001), abgebildet mit einer unbedampften Glasfaserspitze im Scherkraft-Modus des SNOM. Gezeigt wird die morphologische Entwicklung der Schichtoberfläche beim Durchfahren eines Temperaturzyklus zwischen 55°C und 5°C: (a) Abkühlung und (b) Erwärmung. Man erkennt deutlich die Entwicklung periodisch angeordneter länglicher Streifen entlang MnAs[0001], die sich der morphologischen Struktur einer MnAs-Vizinalfläche (kleine, längliche Streifen entlang MnAs[1120]) überlagern.



einzelnen Erhebungen zu Streifen auf. Es entsteht eine alternierende, periodische Anordnung von Streifen aus Erhebungen und Gräben. Die Breite der erhobenen Streifen wächst während der Abkühlung kontinuierlich an. Letztlich werden die Gräben immer weiter verdrängt, bis unterhalb von  $T \approx 11^\circ\text{C}$  die anfängliche Oberflächenmorphologie der Facetten der Vizinalfläche wiederhergestellt ist. Nach Erreichen von  $T = 5^\circ\text{C}$  wurde die Probe wieder langsam erwärmt. Es zeigte sich, dass die beim Abkühlen beobachteten Strukturen nicht bei derselben Temperatur in Erscheinung treten, sondern mit einer Hysterese von mindestens  $T = 10^\circ\text{C}$ . Der Einsatzzpunkt für die Bildung der Gräben liegt daher oberhalb  $T = 20^\circ\text{C}$  (Abb. 5.7). In dem nun folgenden inversen Prozess kann wieder beobachtet werden, dass sich eine anfangs unregelmässige Anordnung der Gräben bei weiterer Erhöhung der Temperatur in eine regelmässige, periodische Struktur entwickelt. Die Breite der Gräben wächst auf Kosten der Erhebungen, bis diese oberhalb einer Temperatur von  $T > 45^\circ\text{C}$  letztlich verschwinden. Die Untersuchung einer weiteren Probe mit der Schichtdicke  $t = 100\text{ nm}$  erbrachte qualitativ das gleiche Ergebnis.

Zur Auswertung der Messergebnisse wurde folgender Weg eingeschlagen. Sollten die periodischen Streifen tatsächlich ein Abbild der Phasenzusammensetzung darstellen, dann müssen die Flächenverhältnisse zwischen erhobenen Streifen und Gräben die Intensitätsverhältnisse der Röntgenreflexe beider Phasen widerspiegeln. Im folgenden wird angenommen, dass die Erhebungen von  $\alpha\text{-MnAs}$  herrühren. Es wurde versucht, die Breite der Streifen mit Hilfe eines selbsterarbeiteten Programmes rechnerisch zu ermitteln. Die Vorgehensweise war einfach: es wurde der topographische Höhen-Mittelwert gebildet und per Fallunterscheidung jeder Bildpunkt entweder der einen oder der anderen Fraktion zugeordnet. Jedoch wirkte sich die Überlagerung der morphologischen Strukturen der Vizinalfläche, deren Höhenunterschiede von ähnlicher Größenordnung wie die der periodischen Streifen sind, negativ auf das Erfassen der tatsächlichen Flächenanteile aus. Aus diesem Grunde erfolgte die Ermittlung der Flächen durch manuelles Ausmessen. Ebenfalls manuell mussten die Domänenperioden bestimmt werden, da eine Auswertung mit Hilfe der Fouriertransformation auf Grund der wenigen erfassbaren Perioden nicht möglich war. In die Messung wurden nur diejenigen Topographiebilder einbezogen, in welchen ein gleichmäßiger Abstand von mindestens drei benachbarten erhobenen Streifen erkennbar war.

Abbildung 5.8 zeigt die Gegenüberstellung der so gewonnenen Daten für die Schichtdicken  $t = 100$  und  $180\text{ nm}$  mit den jeweiligen Vergleichsmessungen aus der Röntgenstrukturanalyse. Die Gegenüberstellung ergibt eine qualitative Übereinstimmung der Daten beider Messmethoden. Dies bestätigt die Vermutung, dass die erhöhten Gebiete der  $\alpha\text{-MnAs}$ -Phase und Gräben der  $\beta\text{-MnAs}$ -Phase entsprechen. Für das Fehlen einer quantitativen Kongruenz kann man zwei Argumente anführen: Erstens erfasst der abtastende Röntgenstrahl ein erheblich größeres Gebiet im Vergleich zu den Topographiebildern (ca.  $25\text{ }\mu\text{m}^2$ ) und führt somit zu einer besseren Statistik. Zweitens ist die Diskrepanz zwischen bloßer Oberflächensensitivität (Topographie) und schicht-durchdringender Röntgenmessung zu beachten. Die Hysterese ist ein auffälliges Merkmal in allen Messungen. Dieses Verhalten kann nach den bisherigen Erkenntnissen nicht erklärt

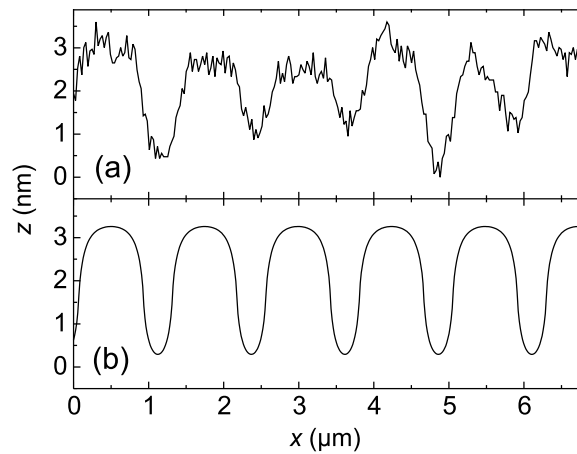


**Abbildung 5.8:** Phasenanteil von  $\alpha$ -MnAs als Funktion der Temperatur für zwei Schichtdicken. (a) und (b) sind die Flächenanteile der erhöhten Streifen, (c) und (d) die entsprechenden Vergleichsdaten aus der Röntgenstrukturanalyse [102]. Die Linien durch die Messpunkte in (c) und (d) dienen der Orientierung beim Vergleich mit (a) und (b).

werden. Es wird aber vermutet, dass die anfänglich irregulären Anordnungen der Streifen und deren Ordnungsprozess während des Abkühlens/Erwärmens mit dem Hysterisverhalten im Zusammenhang stehen. Anhand von Abb. 5.8 kann man auch die theoretisch vorhergesagte lineare Abhängigkeit des Phasenanteils ( $\alpha$ -MnAs) von der Temperatur (Gl. 5.7) im Bereich von  $T_C$  bis  $T_C - 20^\circ\text{C}$  erkennen, in Übereinstimmung mit den ersten Auswertungen in [99].

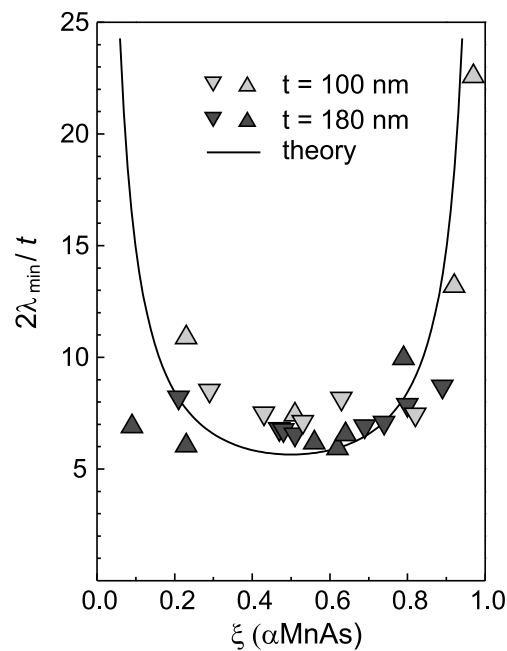
Darüber hinaus kann das Modell der periodischen elastischen Domänen verifiziert werden. Abbildung 5.9 stellt das Oberflächenprofil, wie es durch den Schnitt in Abb. 5.7 ( $T = 26,9^\circ\text{C}$ ) erhalten wurde, dem berechneten Profil des Modells gegenüber. Zur Berechnung wurden die Werte für den Phasenanteil  $\xi = 0.69$  und die Periode  $2\lambda = 1.25 \mu\text{m}$  nach Auswertung der Topographiebilder eingesetzt. Aus Abb. 5.9 wird ersichtlich, dass Experiment und theoretisches Modell in gutem Einklang stehen, was die Annahme periodischer elastischer Domänen unter der Bedingung der Phasenkoexistenz rechtfertigt.

In Abb. 5.10 werden die auf die Schichtdicke normierten Domänenperioden  $\lambda_{\min}/t$  gegen den Phasenanteil des  $\alpha$ -MnAs aufgetragen und mit der universellen Kurve aus der Theorie verglichen, die das Minimum der freien Energie in der Schicht bei Ausbildung periodischer elastischer Domänen koexistierender Phasen repräsentiert. Die Kurve divergiert für  $\xi \rightarrow 0$  bzw.  $\xi \rightarrow 1$ . Diese Divergenz



**Abbildung 5.9:** Vergleich des (a) Oberflächenprofils für eine 180 nm dicke MnAs-Schicht mit (b) dem theoretischen Modell periodischer elastischer Domänen. Die Parameter sind  $\xi = 0.69$  und  $2\lambda = 1.25 \mu\text{m}$ .

kann in den Topographiemessungen nur soweit nachvollzogen werden, bis eine Doppelperiode die Abmaße des Scans erreicht. Die Identifikation einer periodischen Struktur wird in den relativ kleinen Scanbereichen schwierig, wenn die Temperatur gegen die obere oder die untere Grenze der Phasenkoexistenz geht.



**Abbildung 5.10:** Auftragung der normierten Domänenperiode der untersuchten Proben als Funktion des Anteils von  $\alpha$ -MnAs in der Schicht ( $\nabla$  = Abkühlung,  $\triangle$  = Erwärmung). Die Messdaten fallen auf die von der Theorie vorhergesagte universelle Kurve, die das Minimum der freien Energie in der Schicht widerspiegelt.

Soweit die Werte  $\lambda_{\min}/t$  aus den Topographiebildern bestimmt werden konnten, ist jedoch eine gute Übereinstimmung mit der Theorie vorhanden.

In diesem Abschnitt wurde gezeigt, wie durch temperaturabhängige AFM-Untersuchungen die Bildung und Entwicklung periodischer elastischer Domänen nachvollzogen werden konnte. Diese morphologischen Domänen sind das Resultat einer durch die Verspannung in der Schicht bedingten Phasenkoexistenz von ferromagnetischem  $\alpha$ -MnAs und paramagnetischem  $\beta$ -MnAs. Die sich ausbildenden streifenförmigen Gebiete können für die Herstellung von spintronischen Bauelementen von Vorteil sein, wenn die natürliche laterale Strukturierung einer weiteren Behandlung des Materials entgegenkommt — zum Beispiel für ein selektives Ätzen des  $\beta$ -MnAs in der Schicht [105]. Es ist aber auch wichtig zu wissen, dass das System MnAs/GaAs(001) bei Raumtemperatur keine vollständig ferromagnetische Schicht bildet. Die Effizienz einer Spininjektion wird durch die Veränderung der Phasenzusammensetzung entscheidend von der Temperatur abhängen.

## 5.3 Mikromagnetik

Die bisherigen Untersuchungen haben sich mit den strukturellen und elastischen Eigenschaften der MnAs-Schichten beschäftigt. Auf die magnetischen Eigenschaften der Schichten konnte bislang nur indirekt geschlossen werden. Es liegt daher auf der Hand, den Rahmen dieser Arbeit auf die magnetische Rasterkraftmikroskopie (MFM) zu erweitern, um einen weiteren Nachweis für die Phasenkoexistenz von  $\alpha$ -MnAs und  $\beta$ -MnAs zu erhalten. Durch temperaturabhängige MFM-Messungen kann darüber hinaus gezeigt werden, wie sich die Struktur ferromagnetischer Domänen<sup>1</sup> mit der Entwicklung der  $\alpha$ -Phase verändert. Es liegt die Vermutung nahe, dass zwischen der Verspannung der MnAs-Schicht und der Bildung magnetischer Domänen ein wechselseitiger Einfluss herrscht, der über magnetostriktive Effekte vermittelt wird. Möglicherweise findet die Hysteresis in Abb. 5.8 hier ihre Erklärung.

### 5.3.1 Magnetische Schichten: Grundlagen und Kenngrößen

Um das Verständnis der magnetischen und insbesondere der mikromagnetischen Eigenschaften epitaktischer MnAs-Schichten zu erleichtern, soll in diesem Unterabschnitt eine Einführung in die Grundlagen und Grundbegriffe (ferro-)magnetischer Materialien gegeben werden.

#### Kenngrößen des magnetischen Feldes

Das magnetische Feld wird durch zwei Feldgrößen beschrieben, deren Handhabung in der Literatur oft unterschiedlich erfolgt. Das Magnetfeld wird durch die

<sup>1</sup>Der Begriff ‚Domäne‘ soll sich von nun an auf die magnetischen Domänen beziehen.

magnetische Feldstärke  $\vec{H}$  und die magnetische Induktion  $\vec{B}$  charakterisiert. Erstere stellt den Feldlinienverlauf dar, zweitere die Feldliniendichte. Im Vakuum sind beide linear über die Permeabilität  $\mu_0$  miteinander verknüpft:

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H}, \text{ mit } \mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \frac{\text{kg m}}{\text{s}^2 \text{ A}^2}. \quad (5.12)$$

Dringt das Feld in Materie ein, wird der Feldlinienverlauf entsprechend einer auftretenden Polarisation oder Ausrichtung atomarer magnetischer Momente entweder verdichtet oder verdünnt. Entsprechend ändert sich der Ausdruck für die magnetische Induktion in Gl. 5.12, was durch Hinzunahme einer materialabhängigen, dimensionslosen Konstante  $\mu_r$ , die relative Permeabilität, berücksichtigt wird:

$$\vec{B} = \mu_0 \mu_r \vec{H}. \quad (5.13)$$

Durch das Einwirken eines magnetischen Feldes auf einen Körper werden die atomaren magnetischen Momente beeinflusst. Die Summe der atomaren Momente ist die Magnetisierung  $\vec{M}$  des Körpers. Die Veränderung der Magnetisierung bei angelegtem äußeren Feld wird über den Suszeptibilitätstensor  $\hat{\chi}$  ausgedrückt:

$$\vec{M} = \hat{\chi} \vec{H}. \quad (5.14)$$

Zur Vereinfachung soll im folgenden  $\hat{\chi}$  als Skalar betrachtet werden ( $\hat{\chi} \rightarrow \chi$ ). Die Magnetisierung stellt ihrerseits ein magnetisches Response-Feld im inneren des Körpers dar. Daher kann man schreiben:

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} + \mu_0 \vec{M} = \mu_0 (1 + \chi) \vec{H} \stackrel{!}{=} \mu_0 \mu_r \vec{H}, \quad (5.15)$$

womit ein Zusammenhang zwischen der relativen Permeabilität und der Suszeptibilität des betreffenden Materials hergestellt ist. Über die Suszeptibilität lassen sich nun drei Klassen magnetischer Eigenschaften definieren:

1. Für *diamagnetische* Materialien gilt  $-1 \leq \chi < 0$  (Abschwächung<sup>2</sup> des äußeren Feldes im Körper). Diamagnetische Materialien sind durch die Abwesenheit permanenter magnetischer Momente gekennzeichnet, besitzen also entweder abgeschlossene Elektronenschalen (Edelgaskristalle, Bahndrehimpuls  $\vec{L} = 0$ ) oder ausschließlich gepaarte Elektronen mit resultierendem Gesamtspin  $\vec{S} = 0$  bei kovalenten Bindungen (z.B. GaAs).
2. *Paramagnetische* Materialien besitzen kleine, aber positive Suszeptibilitäten:  $\chi > 0, \chi \approx 10^{-5}$ . In ihnen sind permanente magnetische Momente vorhanden, die von Atomen mit ungerader Elektronenzahl oder ungepaarten Elektronen herrühren. Viele Metalle besitzen paramagnetische Eigenschaften. Auch freie Elektronen in Halbleitern rufen Paramagnetismus hervor.

<sup>2</sup>Der Idealfall des völlig feldfreien Körpers wird bei Supraleitern mit  $\chi = -1$  erreicht.

3. *Kollektiver Magnetismus* ist durch eine extrem hohe (positive) Permeabilität gekennzeichnet:  $\chi \gg 1$ ,  $\chi \sim 10^4$ . Man unterscheidet ferromagnetische, ferrimagnetische und antiferromagnetische Stoffe. Kollektiver Magnetismus ist ebenfalls durch das Vorhandensein permanenter magnetischer Momente gekennzeichnet, jedoch unterliegen die Momente im Gegensatz zu den dia- und paramagnetischen Stoffen einer starken gegenseitigen Austauschwechselwirkung, und es kommt unterhalb einer kritischen Temperatur zu spontanen Magnetisierungserscheinungen, welche letztlich zu makroskopischen Erscheinungen (Magneten) führen. Durch die starke Wechselwirkung der Elektronen ist die Theorie des Ferromagnetismus sehr kompliziert. Zwischen äußerem angelegtem Feld und Magnetisierung besteht ein nicht-linearer Zusammenhang. Die magnetische Suszeptibilität ist also temperatur- und feldabhängig:  $\chi = f(\vec{H}, T)$ . Die spontane Magnetisierung hat zur Folge, dass sich im Material Gebiete gleichartiger Ausrichtung der Momente bilden, die sog. Weiss'schen Bezirke oder Domänen.

### Magnetische Domänen in Ferromagnetika

Die Größe und Ausrichtung magnetischer Domänen sowie die Eigenschaften der sie trennenden Domänenwände können durch energetische Betrachtungen erklärt werden, wobei man — bei Abwesenheit eines äußeren Magnetfeldes — zwischen 4 Energiebeiträgen unterscheidet:

1. Die **Anisotropie-Energie** ist abhängig von der Richtung der Magnetisierung in Bezug auf die Kristallachsen, aber auch der Form des Materials. Die Kristallachse, entlang welcher die Magnetisierung zu einem Minimum der Anisotropie-Energie oder kurz Anisotropie führt, wird als leichte Achse der Magnetisierung bezeichnet. Speziell für dünne magnetische Schichten ist die sog. Form-Anisotropie wichtig, die die Änderung des Magnetisierungsverhaltens auf Grund der Reduzierung der Ausdehnung des Materials in einer Dimension bestimmt. Eine wichtige Folge der Form-Anisotropie ist, dass die leichte Achse der Magnetisierung *in plane* liegt.
2. Die **Austauschenergie** entsteht durch die Wechselwirkung benachbarter Momente (Spins) und wird minimal, wenn die Spins parallel bzw. antiparallel ausgerichtet sind. Zwischen benachbarten Domänen mit unterschiedlichen Magnetisierungsrichtungen erfolgt das Drehen der Momente nicht abrupt, sondern über mehrere Atomlagen hinweg, um die Austauschenergie minimal zu halten.
3. Die **Spannungsenergie** hängt mit der elastischen Verformung des Materials zusammen und kann entweder durch äußere Einflüsse oder durch Magnetostriktion hervorgerufen werden.
4. Die **Feldenergie des Streufeldes** hängt mit dem eigenen Magnetfeld zusammen, welches vom magnetisierten Material aufgebaut wird. Hier spielen besonders die freien Momente der Oberfläche eine Rolle. Die Feldenergie ist also von der Form (Oberfläche!) des Körpers abhängig.



Für den hier interessierenden Fall dünner magnetischer Schichten gibt es zwei wichtige Typen von Domänenwänden, nämlich Bloch-Wände und Néel-Wände. Sie unterscheiden sich durch die Drehungsebene der magnetischen Momente in Bezug auf die Ebene der Domänenwand. Der Sachverhalt kann am einfachsten an einer sog.  $180^\circ$ -Wand erklärt werden: Zwischen zwei benachbarten Domänen mit antiparalleler Ausrichtung der Momente bezeichnet die Domänenwand das Gebiet, in dem die Richtung der Momente geändert wird. Dies geschieht über mehrere Atomlagen hinweg. Drehen sich die Momente in einer Ebene parallel zur Domänenwand, so spricht man von einer Bloch-Wand [106]. In dünnen Schichten entspricht dies einer *out-of-plane*-Drehung der Momente. Bei Drehung in einer Ebene senkrecht zur Domänenwand spricht man von einer Néel-Wand [107]; in dünnen Schichten wäre dies eine *in-plane*-Drehung parallel zur Schichtoberfläche.

### Magnetisierungskurven

Unter Einfluss eines äußeren Magnetfeldes  $\vec{H}$  reagiert das Material mit einer Magnetisierung  $\vec{M}$ . In Ferromagnetika kann der Verlauf der Magnetisierungskurve  $\vec{M} = f(\vec{H})$  qualitativ durch drei Punkte charakterisiert werden:

1. Legt man ein äußeres Feld an, so folgt die Magnetisierung bis zu einem Sättigungswert  $M_s$ . Die Sättigung bedeutet mikroskopisch, dass alle magnetischen Momente parallel zu den Feldlinien ausgerichtet sind.
2. Wird das äußere Feld wieder abgeschaltet, bleibt eine Restmagnetisierung erhalten, die Remanenzmagnetisierung  $M_r$ .
3. Die Remanenzmagnetisierung verschwindet erst wieder, wenn das äußere Feld umgepolt wird und den Wert  $H_c$  erreicht hat, die Koerzitivfeldstärke.

Das umgepolte Feld kann wiederum soweit erhöht werden, bis Sättigung bei  $-M_s$  eintritt. Erneutes Zurückfahren von  $\vec{H}$  auf Null ergibt wieder eine Remanenz  $-M_r$  usw. Die Magnetisierungskurve ist daher durch eine Hysterese gekennzeichnet.

### 5.3.2 Magnetische Eigenschaften von MnAs-Schichten

Über die magnetischen Eigenschaften epitaktischer MnAs-Schichten wurde bereits in der Dissertation von F. Schippan umfangreich berichtet [108]. Die wichtigsten Ergebnisse sollen hier kurz zusammengefasst werden.

Das Magnetisierungsverhalten wurde mit Hilfe von SQUID-Messungen (SQUID = engl. *superconducting quantum interference device*) entlang der drei Kristallachsen [0001], [11 $\bar{2}$ 0] und [ $\bar{1}$ 100] durchgeführt. Die Schichtdicke der untersuchten Schichten betrug 80 bzw. 100 nm. Als Sättigungsfeldstärken (angelegtes äußeres Feld) wurden bestimmt:

$$\vec{B} \parallel \text{MnAs}[11\bar{2}0] \text{ in plane} \quad 100 \text{ mT}$$

$$\vec{B} \parallel \text{MnAs}[\bar{1}100] \text{ out of plane} \quad 1 \text{ T}$$

$$\vec{B} \parallel \text{MnAs}[0001] \text{ in plane} \quad 2 \text{ T}$$

Aus diesen Messungen ergibt sich, dass die leichte Achse der Magnetisierung in der Ebene entlang  $\text{MnAs}[11\bar{2}0]$  liegt. Die zweite *in-plane*-Achse  $\text{MnAs}[0001]$  ist die schwere Achse, während die *out-of-plane*-Achse  $\text{MnAs}[\bar{1}100]$  als ‚mittelschwer‘ bezeichnet wird. Aus dem Vorhandensein nur einer einzigen leichten Achse folgt, dass die magnetischen Domänen aus Momenten bestehen, die entweder parallel oder antiparallel zu  $\text{MnAs}[11\bar{2}0]$  ausgerichtet sind. Zwischen zwei Domänen sind die Momente daher um  $180^\circ$  zueinander gedreht.

Der Wert der Sättigungsmagnetisierung wurde zu  $M_s = 800 \text{ kAm}^{-1}$  bestimmt. Die Magnetisierungskurve gemessen entlang der leichten Achse zeigt eine Remanenz, die fast identisch mit dem Wert der Sättigungsmagnetisierung ist:  $M_r \simeq M_s$ . Eine Abhängigkeit der Magnetisierungskurve von der Schichtdicke wurde im Bereich  $100 \text{ nm} \leq d \leq 180 \text{ nm}$  innerhalb der Messgenauigkeit nicht festgestellt.

Desweiteren wurde die Differenz der Anisotropie-Energie zwischen den Messungen  $\vec{H} \parallel \text{MnAs}[0001]$  und  $\vec{H} \parallel \text{MnAs}[11\bar{2}0]$  sowie  $\vec{H} \parallel \text{MnAs}[\bar{1}100]$  und  $\vec{H} \parallel \text{MnAs}[11\bar{2}0]$  aus der zwischen beiden Magnetisierungskurven eingeschlossenen Fläche über

$$K = \int_0^{M_s} \mu_0 H dM \quad (5.16)$$

ermittelt. Daraus wurden folgende Anisotropie-Energien ermittelt. Bei Rotation der Momente

1. aus der leichten Achse in die schwere ist

$$K_{\text{MnAs}[11\bar{2}0] \rightarrow \text{MnAs}[0001]} = 740 \text{ kJm}^{-3};$$

2. aus der leichten in die mittelschwere (*out of plane*) ist

$$K_{\text{MnAs}[11\bar{2}0] \rightarrow \text{MnAs}[\bar{1}100]} = 360 \text{ kJm}^{-3}.$$

Daraus folgt, dass der Energiebetrag, der notwendig ist, um die Momente in die schwere Achse zu drehen, doppelt so hoch ist wie der bei Drehung in die mittelschwere *out-of-plane*-Achse.

Mit diesen Erkenntnissen konnte gefolgert werden, dass die Domänenwände in den MnAs-Schichten vom Typ Bloch-Wand sind, da das Umklappen der Momente von  $\vec{m} \parallel \text{MnAs}[11\bar{2}0]$  nach  $\vec{m} \parallel \text{MnAs}[\bar{1}\bar{1}20]$  parallel zur Domänenwand über eine *out-of-plane*-Drehung energetisch günstiger als eine  $180^\circ$ -*in-plane*-Drehung ist.

### 5.3.3 MFM-Untersuchungen

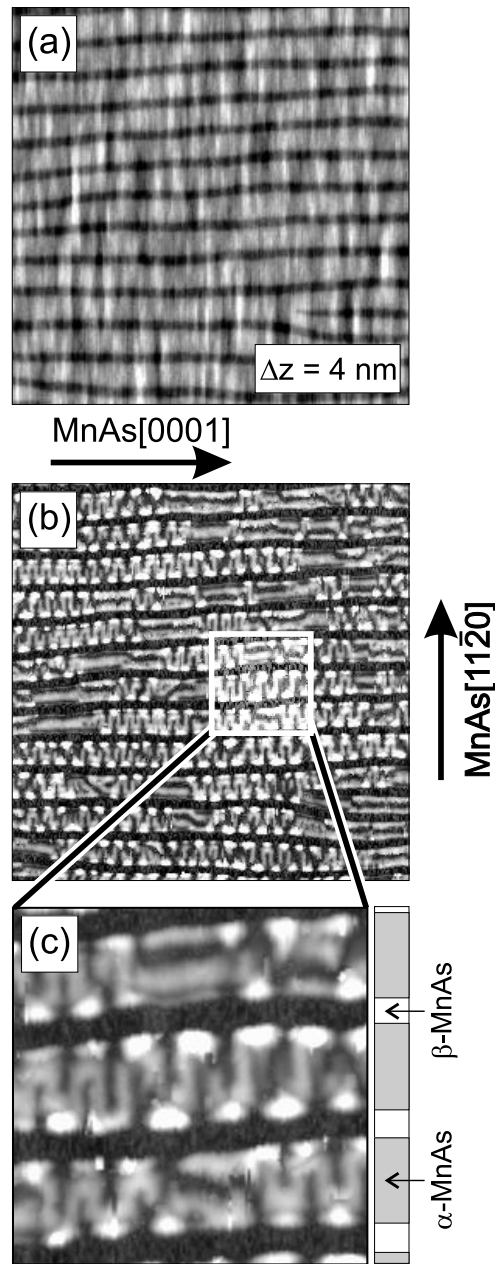
#### Korrelation zwischen Topographie und magnetischem Kontrast

Nach den Ausführungen in Abschnitt 5.2 ist es natürlich interessant, eine genaue Gegenüberstellung von Topographie und räumlicher Verteilung der magnetischen Domänen zu bekommen. Zu diesem Zweck wurden MFM-Messungen in einem Standard-AFM<sup>3</sup> mit temperaturgeregelter Substrathalterung durchgeführt. Der Mechanismus des MFM gestattet es, durch eine geeignete Wahl des Arbeitsabstandes  $z_0$  zwischen Cantilever und Probenoberfläche (siehe Kap. 2) in zwei verschiedenen Kraft-Abstands-Regimen zu rastern. Dabei kommt es auf das Verhältnis der beiden interessierenden Kräfte — van-der-Waals-Kraft als Grundlage topographieinduzierten Kontrasts und magnetostatischer Kraft zur Abbildung magnetischer Strukturen — an. Van-der-Waals-Kräfte sind im Gegensatz zu elektromagnetischen Kräften sehr kurzreichweitig ( $\sim r^{-6}$ ) und dominieren in einem Bereich von etwa  $z_0 \leq 10$  nm. Bei Vergrößerung des Arbeitsabstandes gibt es einen kritischen Bereich von wenigen Nanometern, in dem ein nahezu sprunghafter Übergang vom van-der-Waals-Regime in das magnetostatische Regime stattfindet. In den hier durchgeführten Messungen liegt dieser Bereich oberhalb von  $z_0 = 50$  nm. Sobald man diesen Bereich gefunden hat, ist es möglich, lediglich durch eine kleine Änderung von  $z_0$  zwischen den beiden Modi ‚umzuschalten‘.

Die Messungen im AFM/MFM wurden ohne Anlegen eines äußeren Magnetfeldes durchgeführt. Die Probe, bestehend aus einer 130 nm dicken MnAs-Schicht mit einer Periode der elastischen Domänen von 800 nm, war im Vorfeld für einige Minuten auf 55°C geheizt worden, um eine eventuell vorhandene Magnetisierung durch die Überführung in den paramagnetischen Zustand ( $T > T_C$ ) zu zerstören. Danach wurde die Probe wieder auf Raumtemperatur ( $T = 23^\circ\text{C}$ ) abgekühlt.

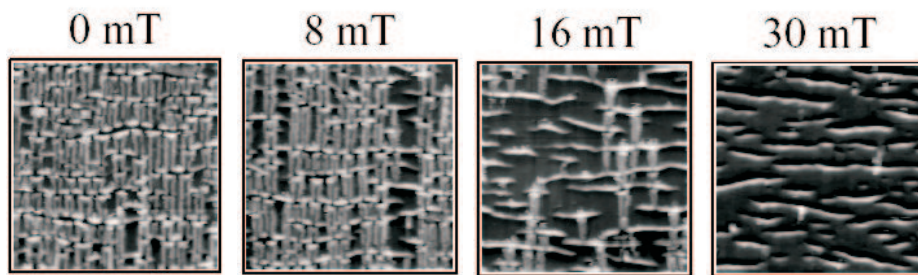
Abbildung 5.11(a) zeigt ein  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ -Rasterkraftbild mit topographischem Kontrast. Dieselbe Stelle wurde daraufhin im magnetostatischen Regime gescannt [5.11(b)]. Der Vergleich beider Bilder lässt eindeutig erkennen, dass magnetischer Kontrast ausschließlich in den topographisch erhöhten Streifen vorhanden ist. Dies bestätigt das Resultat aus Abschnitt 5.2, dass die periodische Oberflächenmodulation ein Abbild der Phasenkoexistenz des ferromagnetischen  $\alpha$ -MnAs und des paramagnetischen  $\beta$ -MnAs darstellt. Die MFM-Spitze war entlang ihrer Achse (z-Richtung) magnetisiert. Daher bilden die hellen Kontraste in Abb. 5.11(b) die Domänenwände ab, die nach [108] als Bloch-Wände eine *out-of-plane*-Drehung der Momente benachbarter Domänen aufweisen. Das MFM-Rasterbild zeigt innerhalb der ferromagnetischen Streifen zwei qualitativ verschiedenartige Verläufe der Domänenwände, wie im Detailbild 5.11(c) deutlich zu erkennen ist. Zum einen gibt es eine mäanderartige Domänenstruktur. Sie besteht aus Domänen mit gegensätzlicher ( $180^\circ$ ) Magnetisierung entlang der leichten Achse MnAs[11 $\bar{2}$ 0]. An den Enden der in MnAs[11 $\bar{2}$ 0] orientierten Domänenwände sind jeweils abwechselnd helle Brücken entlang MnAs[0001] zu erken-

<sup>3</sup>M5 von Fa. Park Scientific Instruments



**Abbildung 5.11:** Rasterkraftbilder der Oberfläche einer 130 nm dicken, unmagnetisierten MnAs-Schicht mittels AFM/MFM bei Raumtemperatur ( $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ ). Die jeweils unterschiedlichen Arbeitsmodi führen zu (a) topographieinduziertem Kontrast und (b) magnetischem Kontrast. Starkes magnetisches Signal in (b) rührt ausschließlich von den erhöhten Streifen in (a) her (helle Bereiche). In (c) ist ein detaillierter Ausschnitt ( $2,5 \times 2,5 \mu\text{m}^2$ ) aus (b) vergrößert dargestellt.

nen, die den Mäander schließen. Aus der Aufnahme kann die mittlere Breite der Domänen zu 200 nm abgeschätzt werden. Innerhalb der Bloch-Wände ist eine Feinstruktur zu erkennen, bei der sich die Richtung der *out-of-plane*-Magnetisierung umkehrt. Zwischen benachbarten ferromagnetischen Streifen sind keine strengen Korrelationen in Bezug auf die Position der Domänen vorhanden. Auf der anderen Seite gibt es sich in Richtung MnAs[0001] erstreckende Domänenwände, deren Länge einige Perioden der mäanderartigen Domänen entspricht. Diese Domänenwände entlang MnAs[0001] können in sich homogen sein, zeigen aber auch eine gewisse Substruktur mit sich andeutender Sub-Mäanderbildung.

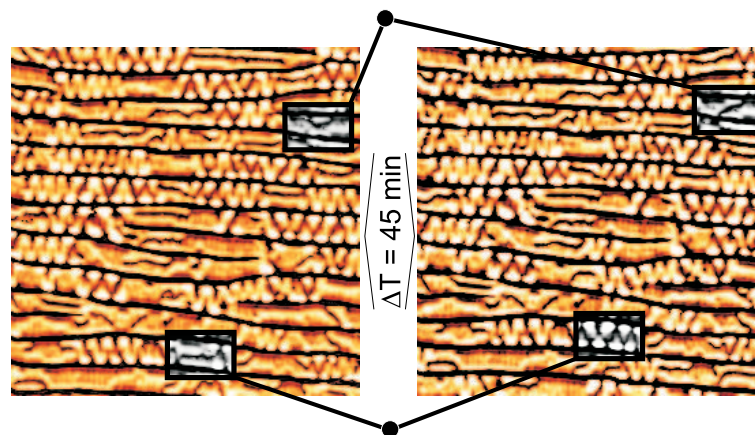


**Abbildung 5.12:** MFM-Aufnahmen einer 100 nm dicken MnAs-Schicht mit schrittweise erhöhter Aufmagnetisierung ( $\vec{H} \parallel \text{MnAs}[11\bar{2}0]$ ). Die Zahl der Domänenwände entlang der leichten Achse nimmt im Gegensatz zur Zahl der Domänenwände entlang der schweren Achse ab. Aus [108].

An dieser Stelle ist ein Vergleich mit den mikromagnetischen Untersuchungen aus [108, 109] notwendig. Bei diesen Arbeiten wurden MFM-Bilder von schrittweise aufmagnetisierten MnAs-Schichten gemacht (Abb. 5.12). Während das MFM-Bild ohne Magnetisierung der Probe ausgeprägte Domänenwände in Richtung der leichten Achse zeigt, nimmt deren Zahl bei steigender Magnetisierung ab, bis die topographisch erhöhten Gebiete eine große, einheitlich graue (d. h. kontrastlose) Fläche bilden (30 mT). Lediglich an den Rändern der Gebiete ist ein Kontrast vorhanden, der in Richtung der schweren Achse lang erstreckte Domänenwände abbildet. Diese Messungen zeigen, dass unter Einwirkung eines äußeren magnetischen Feldes die Energiebilanz zugunsten einer in MnAs[0001] elongierten Domänenwandform verschoben wird. An dieser Stelle müssen die neuen Erkenntnisse über die Form der koexistierenden Phasen hinzugezogen werden. Demnach bestehen ausschließlich die topographisch erhöhten Gebiete aus ferromagnetischem  $\alpha$ -MnAs, während die Gräben paramagnetisch sind und eine magnetische Separation der ferromagnetischen Streifen bewirken. Durch die elastische Verformung insbesondere an den Randgebieten der Streifen könnten die magnetischen Momente eine Komponente in Richtung MnAs[ $\bar{1}100$ ] (*out of plane*) erhalten. Dies hat möglicherweise Konsequenzen auf den Beitrag der Anisotropie-Energie. Eine weitergehende Diskussion wird am Ende des Abschnitts 5.3 geführt, wo die Ergebnisse der temperaturabhängigen MFM-Messungen hinzugezogen werden können.

### Zeitliche Stabilität der Domänen

Die Methode der Magnetischen Rasterkraftmikroskopie beruht auf der magnetostatischen Kraft, die die magnetischen Domänen(-wände) auf die magnetisierte Cantilever-Spitze ausüben. Bei dieser Messmethode muss jedoch generell beachtet werden, dass diese Wechselwirkung auch zu einer Beeinflussung der magnetischen Struktur der Probe durch die MFM-Spitze führen kann. Um den Fall eines durch die MFM-Spitze induzierten Umklappens von Domänen ausschließen zu können, wurden mehrere Scans einer Stelle aufgenommen und miteinander verglichen. Ein typisches Merkmal eines induzierten Umklappens ist ein scharfer Kontrast zwischen zwei aufeinanderfolgenden Scanzeilen im MFM-Bild. Solche Merkmale wurden in den Bildern nicht gefunden. Ein genauer Vergleich zeigt je-



**Abbildung 5.13:** Zeitliche Stabilität der Domänenstruktur während eines MFM-Dauerscans an einer 130 nm dicken MnAs-Schicht ( $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ ). Die Aufnahmezeit pro Bild betrug etwa 5 Minuten. Zwischen dem ersten und letzten Bild sind deutliche Unterschiede in der Domänenstruktur zweier markierter Bereiche zu erkennen.

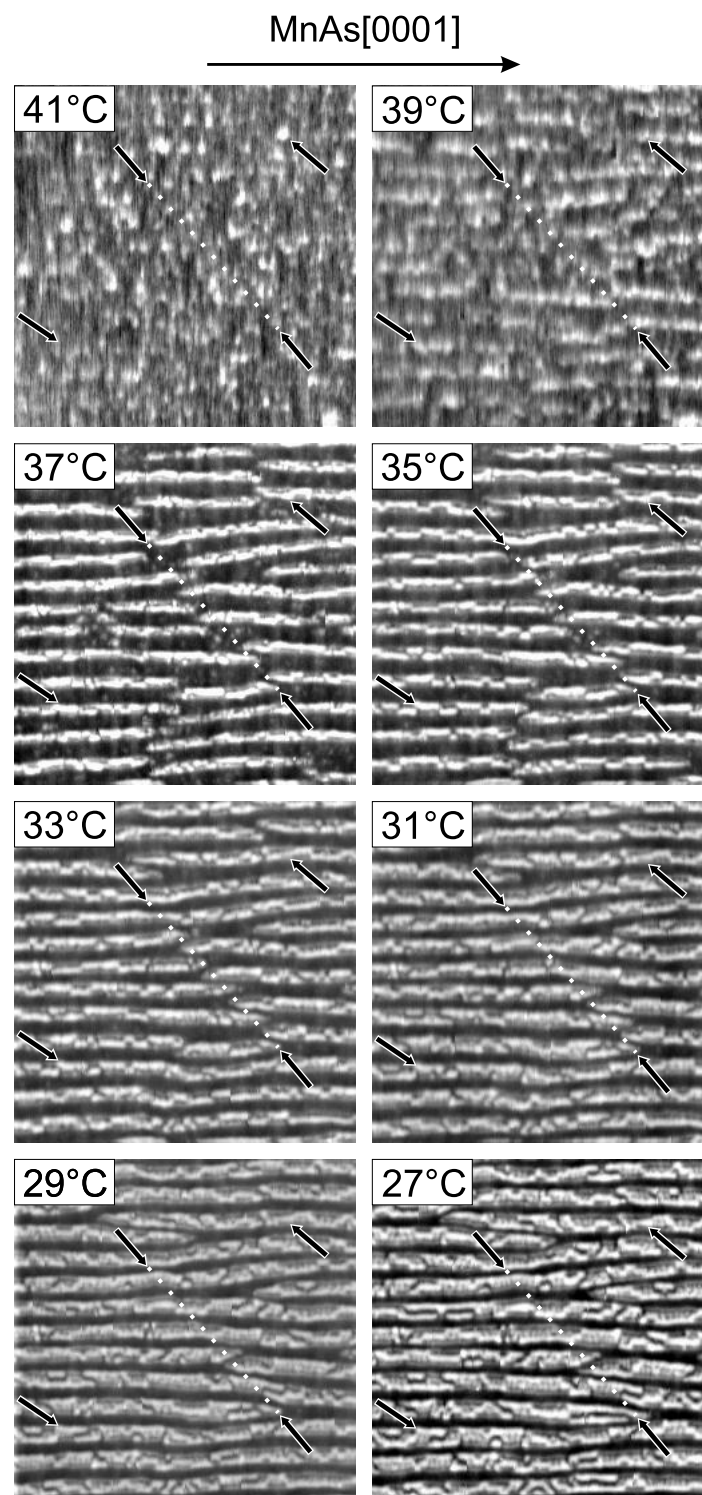
doch eine Veränderung der Domänenstruktur, die nicht auf eine Wechselwirkung mit der MFM-Spitze zurückzuführen ist. Abbildung 5.13 stellt die erste und die letzte Aufnahme eines 45-minütigen Dauerscans an einer 180 nm-MnAs-Schicht ohne Magnetisierung und bei  $T = 300 \text{ K}$  gegenüber. Die Aufnahmezeit eines MFM-Bildes betrug ca. 5 Minuten. An den zwei besonders gekennzeichneten Stellen ist eine deutliche Veränderung in Form bzw. Verlauf der Domänenwände zu erkennen. Im Bildausschnitt 5.13(a) klappt eine zuerst sichelförmige Linie in eine schräg den  $\alpha$ -MnAs-Streifen schneidende um. In Abb. 5.13(b) kann man das Umwandeln der in MnAs[0001] elongierten Domänenwände in eine Mäanderstruktur beobachten. Aus diesem Verhalten kann die Schlussfolgerung gezogen werden, dass sich die beiden Domänenwand-Konfigurationen (bevorzugt in Richtung MnAs[11 $\bar{2}$ 0] oder bevorzugt in MnAs[0001]) in einem labilen Gleichgewicht befinden.



## Temperaturabhängige Messungen

Die räumlich streifenförmige Anordnung der beiden Phasen  $\alpha$ -MnAs und  $\beta$ -MnAs ist vom Standpunkt der Form-Anisotropie sehr interessant. Bei dünnen magnetischen Schichten erzwingt die Quasi-Zweidimensionalität eine leichte Achse der Magnetisierung *in plane*. Die *in-plane*- und *out-of-plane*-Richtungen des epitaktischen Einkristalls können in ihrem Magnetisierungsverhalten sehr verschieden sein im Vergleich zu den entsprechenden Richtungen im *bulk*-Material. Den Ansatzpunkt für eine weitergehende Diskussion der magnetischen Domänen liefert das MFM-Bild aus Abb. 5.11(b). Wie bereits erläutert, zeichnet sich die mikromagnetische Struktur innerhalb der ferromagnetischen  $\alpha$ -MnAs-Streifen durch zwei verschiedene Verläufe der Domänenwände aus. Einerseits können mäanderförmige Strukturen entstehen, andererseits werden langgezogene, sich in Richtung der schweren Achse MnAs[0001] erstreckende Strukturen beobachtet. Es liegt daher die Vermutung nahe, dass die Form-Anisotropie der Schicht, die zunächst eine *in-plane*-Magnetisierung parallel MnAs[11 $\bar{2}$ 0] bevorzugt, durch die Beschränkung in einer weiteren Dimension derart beeinflusst wird, dass die Ausrichtung der Momente in Richtung MnAs[11 $\bar{2}$ 0] energetisch unvorteilhaft wird. Nach dem Modell periodischer elastischer Domänen ändert sich der Phasenanteil  $\alpha$ -MnAs und damit die Breite der ferromagnetischen Streifen linear mit der Temperatur. Dadurch sollte sich aber auch die Form-Anisotropie zwischen MnAs[0001] und MnAs[11 $\bar{2}$ 0] gezielt beeinflussen lassen. Von diesem Standpunkt sind temperaturabhängige MFM-Messungen im Bereich um  $T_C$  von großem Interesse, um das Verhalten der Domänen in den sich bildenden ferromagnetischen Streifen, d. h. den Übergang von einem quasi eindimensionalen Gebiet zu einer (quasi) zweidimensionalen Schicht zu beobachten.

Abbildung 5.14 zeigt eine Serie von MFM-Aufnahmen ( $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ ), an einer 130 nm dicken MnAs-Schicht, die von 41°C auf 27°C in Schritten von 2°C abgekühlt wurde. Die eingezeichneten Pfeile wiederholen sich in allen Bildern und erleichtern die Orientierung in der folgenden Beschreibung. Oberhalb von  $T_C$  sind kleine helle Punkte zu erkennen (oberer rechter Pfeil in Abb. 5.14), die offensichtlich Kondensationskeime des bevorstehenden Phasenübergangs darstellen. Etwas unterhalb  $T_C$  (39°C) steigt die Zahl der ferromagnetischen Punkte, die sich in Ketten entlang der MnAs[0001]-Richtung anordnen. Bei weiterer Abkühlung nach  $T = 37^\circ\text{C}$  wandeln sich die Ketten in ferromagnetische Streifen mit einer mittleren Länge von etwa  $5 \mu\text{m}$  um. Die Anordnung ist hierbei schon sehr wohlgeordnet und periodisch in MnAs[11 $\bar{2}$ 0]. Innerhalb der Streifen sind mäanderartige sowie sich in MnAs[0001] erstreckende Domänenstrukturen zu erkennen (unterer linker Pfeil). Die Breite der ferromagnetischen Streifen wächst kontinuierlich mit abnehmender Temperatur in Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Abschnitt 5.2. Die länglichen Domänen in MnAs[0001]-Richtung spalten in kürzere Subdomänen auf. Wegen der wachsenden Länge findet eine verstärkte Durchdringung der ferromagnetischen Streifen statt (siehe punktierte Linie zwischen Pfeilen). Bei  $T = 33^\circ\text{C}$  sind die meisten der Streifen in Richtung MnAs[0001] miteinander verwachsen. Die übrig gebliebenen bilden gewissermaßen Versetzungen innerhalb der periodischen Anordnung von  $\alpha$ - und  $\beta$ -MnAs.



**Abbildung 5.14:** Serie von  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ -MFM-Aufnahmen an einer 130 nm dicken MnAs-Schicht bei verschiedenen Temperaturen zwischen 41°C und 27°C. Die Pfeile beziehen sich auf die Beschreibung im Text.

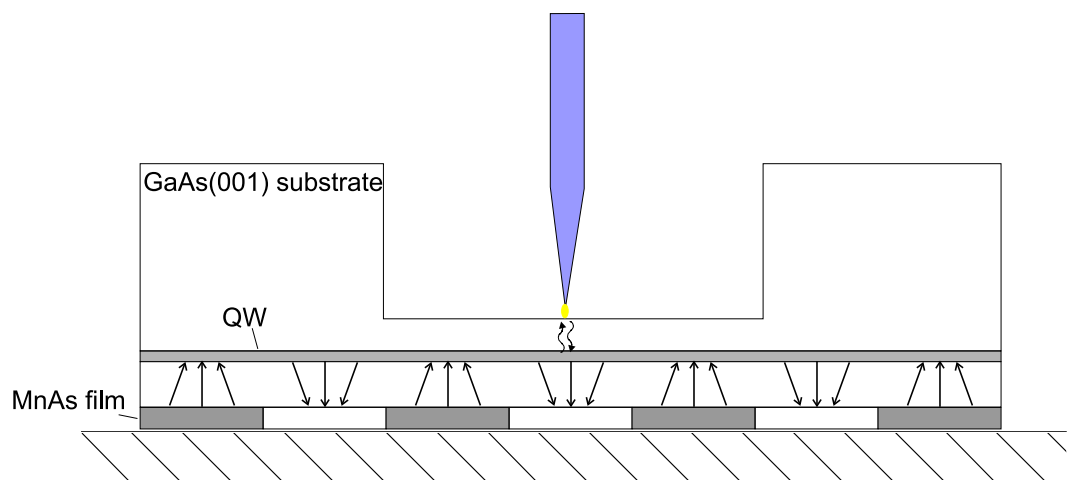
Die Messungen zeigen, dass die magnetische Struktur der MnAs-Schichten auf GaAs(001) durch die Breite der aufgrund der Phasenkoexistenz entstehenden streifenförmigen Gebiete der  $\alpha$ -Phase bestimmt wird. Die Reduzierung der zweiten Dimension (MnAs[11 $\bar{2}$ 0]) spielt eine entscheidende Rolle bei der räumlichen Anordnung der Bloch-Wände und hat möglicherweise zur Folge, dass die Richtung MnAs[11 $\bar{2}$ 0] magnetisch schwerer wird als MnAs[0001].

## 5.4 Ergebnisse und weiterführende Ideen

Das Halbleiter-Ferromagnet-Hybridsystem MnAs/GaAs(001) weist besondere strukturelle und mikromagnetische Merkmale auf, die für die Integration dieser Materialien in einer zukünftigen Realisierung spintronischer Bauelemente von Bedeutung sein könnten. Zu den strukturellen Eigenschaften zählt die Phasenkoexistenz von ferromagnetischem  $\alpha$ -MnAs und paramagnetischem  $\beta$ -MnAs in einem Temperaturbereich zwischen der ferromagnetischen Übergangstemperatur  $T_C \approx 40^\circ\text{C}$  und etwa  $T = 10^\circ\text{C}$ . Die Phasenkoexistenz liegt in der Verspannung der epitaktischen MnAs-Schicht begründet. Durch temperaturabhängige Messungen der Oberflächentopographie von Schichten unterschiedlicher Dicke mittels Rasterkraftmikroskopie im Scherkraftmodus des SNOM konnte in dem o. g. Temperaturbereich eine charakteristische, periodische Oberflächenkorrugation in Richtung MnAs[11 $\bar{2}$ 0] beobachtet werden. Dieser Effekt kann mit einem theoretischen Modell periodischer elastischer (struktureller) Domänen beschrieben werden, das den Gleichgewichtszustand beider Phasen (Minimum der freien Energie) in der Schicht berechnet. Die mikromagnetischen Eigenschaften der ferromagnetischen  $\alpha$ -MnAs-Phase werden im Bereich der Phasenkoexistenz durch die strukturellen Besonderheiten geprägt. Aufgrund der Form-Anisotropie der MnAs-Schicht liegt die leichte Achse der Magnetisierung *in plane* in MnAs[11 $\bar{2}$ 0]. Die magnetischen Domänen sind damit in Richtung quer zu den strukturellen Domänen ausgerichtet. Bei Veränderung der Temperatur variiert die Breite der  $\alpha$ -MnAs-Streifen. Somit kann die Ausrichtung und Verteilung der magnetischen Domänen beeinflusst werden.

Die periodisch streifenförmige Anordnung der  $\alpha$ -MnAs- und  $\beta$ -MnAs-Phase der epitaktischen Schicht auf GaAs(001) bei Raumtemperatur hat wichtige Konsequenzen für die Materialintegration innerhalb dieses Hybridsystems. Einerseits ist durch den Anteil des paramagnetischen  $\beta$ -MnAs eine entsprechend geringere Flächenstromdichte bei der Injektion spin-polarisierter Ladungsträger zu erwarten. Andererseits könnte die natürliche Anordnung der Phasen zur lateralen Strukturierung von Bauelementen ausgenutzt werden. Hier müssen geeignete Verfahren entwickelt werden, die das  $\beta$ -MnAs durch selektives Ätzen aus der Schicht entfernen [105].

Als Ausblick auf eine mögliche Verbindung struktureller und elektronischer Eigenschaften innerhalb des hier vorgestellten epitaktischen Systems wird folgender Probenaufbau vorgeschlagen. Das Hybridsystem MnAs/GaAs(001) besitzt die Eigenschaft, bei Raumtemperatur in MnAs[11 $\bar{2}$ 0] periodische Anordnungen elastischer Domänen zweier kristallographischer Phasen auszubilden. Die Ver-



**Abbildung 5.15:** Prinzip eines Probenaufbaus zur Untersuchung des Einflusses der Verspannungen zwischen GaAs(001)-Oberfläche und epitaktischer MnAs-Schicht auf einen Quantenfilm. Optische Nahfelduntersuchungen sind erst möglich, wenn das Substrat von der Rückseite stellenweise weggeätzt wird.

spannungen in der MnAs-Schicht betreffen neben dem epitaktischen MnAs selbst auch zumindest die oberen Atomlagen des GaAs-Substrates. Daher wäre es interessant zu sehen, wie ein zwischen Substrat und MnAs-Schicht befindlicher Quantenfilm durch die periodischen elastischen Domänen der MnAs-Schicht beeinflusst wird. Sollten sich periodische Druck- bzw. Zugverhältnisse einstellen, so wird eine räumlich direkte Modulation der Bandlücke erwartet. Ein PL-Flächenscan könnte über die Verhältnisse Aufschluss geben. Bei einer räumlich direkten Modulation der Bandlücke sollte sich die Intensität sowie die energetische Lage der PL räumlich (periodisch) ändern. Für letztere ist eine Detektion bei Raumtemperatur auf Grund der thermischen Verbreiterung der PL-Emission sicherlich schwierig. Der Nachweis einer Modulation muss daher über die Veränderung der Intensität des PL-Signals geführt werden. Bei Erwärmung über die Curie-Temperatur bzw. bei Abkühlung unterhalb der unteren Temperaturgrenze der Phasenkoexistenz sollte die Modulation verschwinden. Hierzu bietet sich die (temperaturabhängige) optische Nahfeldmikroskopie an, da die Sub-Mikrometerabmessungen der elastischen Domänen (je nach Schichtdicke) bzw. der Modulation des Quantenfilmes eine lateral höhere Ortsauflösung als in klassischen optischen Mikroskopen verlangt. Ein gewisses Hindernis solcher Messungen stellt MnAs selbst dar, da es optisch undurchlässig ist. Aus diesem Grunde wird vorgeschlagen, dass das Substrat bis auf wenige Nanometer an den Quantenfilm heran weggeätzt wird, beispielsweise in einem Fenster von etwa  $1\text{ mm} \times 1\text{ mm}$ . Das mögliche Prinzip einer derartigen Messung ist in Abb. 5.15 dargestellt.

# Kapitel 6

## Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit beinhaltet Untersuchungen von beabsichtigten und unbeabsichtigten strukturellen Einflüssen auf elektronische und magnetische Eigenschaften in epitaktischen Halbleiter-Heterostrukturen und Ferromagnet-Halbleiter-Hybridsystemen. Die Untersuchungen wurden mit Hilfe von Rastersondenverfahren durchgeführt. Dabei kamen die Methoden der temperaturabhängigen optischen Rasternahfeldmikroskopie und der Rasterkraftmikroskopie zum Einsatz. Zusammengefasst wurden folgende Resultate erzielt.

Es wurden Aufbau und Wirkungsweise eines neuartigen optischen Rasternahfeldmikroskops für den Einsatz bei tiefen Temperaturen dargestellt. Das Mikroskop arbeitet in Reflexionsgeometrie. Zur Bewegung von Probe und Nahfeldsonde wurde die Mechanik eines kommerziellen Tieftemperatur-Rastertunnelmikroskops adaptiert. Die Verwendung von unbedampften Glasfaserspitzen als Nahfeldsonden erbringt eine optische Auflösung von etwa 240 nm bei einer Transmission von  $10^{-2}$ . Die Abstandsdetektion erfolgt nach der Methode der Scherkraftmessung mit einem Schwingquarz, welcher gleichermaßen als Aktuator sowie als Detektor fungiert. Anhand von epitaktischen Schichten (GaN, GaAs) wurde eine hohe Sensitivität der Abstandsdetektion nachgewiesen, die eine topographische Höhenauflösung im Sub-Nanometerbereich bis hin zur Detektion einzelner Monolagenstufen gestattet.

Die wachstumskorrelierten Grenzflächeneigenschaften in GaAs-Quantenfilmen mit AlAs/GaAs-Übergitterbarrieren wurden mit Hilfe des optischen Rasternahfeldmikroskops untersucht. Die epitaktische Probenherstellung war durch zweidimensionales Inselwachstum geprägt. An zwei Referenzproben konnte der Einfluss einer Wachstumsunterbrechung auf die Morphologie der GaAs-Grenzflächen studiert werden. Die Wachstumsunterbrechung führt zur Bildung atomar glatter Grenzflächen mit einer Dickenfluktuation von einer Monolage in größeren, zusammenhängenden Gebieten. Entsprechend einer Dicke von  $n$ ,  $n - 1$  und  $n + 1$  Monolagen weist die Photolumineszenz des Quantenfilms drei Emissionslinien auf. Über optische Nahfeldaufnahmen der Photolumineszenz im Illuminations-/Kollektionsmodus konnte die räumliche Verteilung der Gebiete konstanter Dicke bestimmt werden. Dabei traten die Monolagenfluktuationen  $n - 1$  bzw.

$n + 1$  als Inseln mit einem Durchmesser von etwa  $1 \mu\text{m}$  in Erscheinung. Darüber hinaus konnten weitere Monolagenaufspaltungen (Doppelinseln) identifiziert werden. Eine Korrelation zwischen den im Scherkraftmodus detektierten inselartigen Merkmalen der Oberflächentopographie und der räumlichen Verteilung der Photolumineszenz des Quantenfilms wurde nicht festgestellt. Zur Erklärung der optischen Nahfeldaufnahmen wurde ein Modell der Grenzflächenmorphologie vorgestellt, dem das zweidimensionale Inselwachstum auf den GaAs-Terrassen zugrunde gelegt ist.

Das Transportverhalten von Ladungsträger in GaAs-Quantendrähten wurde mittels orts aufgelöster Photostromanregung im optischen Rasternahfeldmikroskop untersucht. Die Quantendrähte waren durch Überwachsen auf einer mit geätzten Mesakanten strukturierten GaAs(311)-Oberfläche hergestellt worden. Bei Einbettung des Quantendrahtes in die intrinsische Zone einer  $p-i-n$ -Diode aus (Al,Ga)As kann eine dominante Elektrolumineszenz aus dem Quantendrahtgebiet beobachtet werden. Die Photostrommessungen wurden zunächst an der Spaltkante einer senkrecht zum Verlauf des Quantendrahts gebrochenen Mesa durchgeführt. Es wurde ein qualitativ unterschiedliches Verhalten des Photostromsignals für Spannungen deutlich unterhalb bzw. in der Nähe des Flachbandfalls beobachtet und diskutiert. Weiterhin fiel auf, dass das räumliche Maximum des Photostromsignals mit der Position des Quantendrahts in der Spaltfläche übereinstimmte. Das Vorhandensein von Injektionskanälen in Wachstumsrichtung der Diode, d. h. senkrecht zum Quantendraht, konnte ausgeschlossen werden. In weiteren Messungen durch Anregung in Wachstumsrichtung wurde die räumliche Verteilung des Photostromsignals in der Ebene des Quantenfilms untersucht. Hierbei wurden verschiedene Anregungsenergien eingesetzt mit dem Ziel, Ladungsträger im Quantenfilm bzw. Quantendraht selektiv anzuregen. Bei Anregung von Ladungsträgern in der Quantenfilmebene wurde ein Maximum des Photostromsignals in einem streifenförmigen Gebiet entlang des Quantendrahts gefunden. Die Beobachtungen konnten im Zusammenhang mit der Lebensdauer der angeregten Ladungsträger und der Tunnelwahrscheinlichkeit durch die Potenzialbarriere im elektrischen Feld der Diode erklärt werden.

Epitaktische MnAs-Schichten auf GaAs(001) weisen in der Röntgenstrukturanalyse eine Koexistenz der ferromagnetischen  $\alpha$ -MnAs- und der paramagnetischen  $\beta$ -MnAs-Phase in einem Temperaturbereich bis zu  $30^\circ\text{C}$  unterhalb der Curie-Temperatur  $T_C \approx 40^\circ\text{C}$  auf. Das gegenüber dem MnAs-Volumenmaterial abweichende Verhalten beim ferromagnetischen Phasenübergang wird durch die Verspannung der epitaktischen MnAs-Schicht erklärt. Mittels temperaturabhängiger Rasterkraftmikroskopie wurde die Oberflächentopographie der MnAs-Schichten untersucht. Hierzu wurde die Abstandsdetektion durch Scherkraftmessung im optischen Rasternahfeldmikroskop verwendet. Im Bereich der Phasenkoexistenz konnte die Entwicklung von periodischen, entlang MnAs[0001] verlaufenden Domänen erstmals direkt beobachtet werden. Durch den Vergleich der Flächenanteile der Domänen mit den aus den Röntgenbeugungsspektren ermittelten Phasenanteilen wurde der topographische Kontrast als Merkmal der Phasenkoexi-



stanz identifiziert. Die Ergebnisse lassen sich gut mit einem Modell periodischer elastischer Domänen koexistierender Phasen beschreiben, das die räumliche Anordnung der Domänen unter der Voraussetzung des Minimums der freien Energie in der Schicht berechnet.

Die topographischen Untersuchungen am Ferromagnet-Halbleiter-Hybridsystem MnAs/GaAs(001) wurden durch temperaturabhängige Messungen in magnetischer Rasterkraftmikroskopie erweitert. Die Messungen bestätigen die Zuordnung der Phasen  $\alpha$ -MnAs und  $\beta$ -MnAs in den topographischen Aufnahmen. Die mikromagnetische Struktur innerhalb der ferromagnetischen Streifen wird durch die Begrenzung der Streifenbreite in Richtung MnAs[11 $\bar{2}$ 0] beeinflusst, die zugleich die leichte Achse der Magnetisierung in der Schicht darstellt. Es wurden mäanderförmige wie auch längs der Streifen verlaufende magnetische Domänenwände beobachtet. Bei Abkühlung der Schicht zeigen sich interessante Entwicklungen der magnetischen Domänenwände, wenn der Phasenanteil des  $\alpha$ -MnAs und damit die Breite der ferromagnetischen Streifen zunimmt. Es wird vermutet, dass die Einschnürung des ferromagnetischen Gebiets innerhalb der elastischen Domänenstruktur zu einer weiteren Form-Anisotropie führt.

Zum Abschluss soll ein kurzer Ausblick auf weiterführende interessante Fragestellungen für künftige Experimente gegeben werden. (1) Eine Verbindung von optischer Rasternahfeldmikroskopie mit magnetischer Rasterkraftmikroskopie (MFM-SNOM) würde neue Möglichkeiten eröffnen, magnetische Halbleiternanostrukturen, beispielsweise auf der Basis von  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ , zu untersuchen. (2) In Kap. 5 wurde auf die Möglichkeit hingewiesen, wie die periodischen, elastischen Domänen in MnAs-Schichten auf GaAs(001) verwendet werden könnten, um die elektronischen Eigenschaften eines unterhalb der MnAs-Schicht eingebauten Quantenfilms bewusst zu modulieren. (3) Um die Ladungsträgerdynamik in den vorgestellten Quantendraht-LED-Strukturen im Detail zu klären, sind zeitaufgelöste Photostromuntersuchungen notwendig. (4) Temperaturabhängige Messungen der Magnetisierungskurven von MnAs-Schichten auf GaAs(001) könnten eine Abhängigkeit der Orientierung der leichten Achse der Magnetisierung vom Phasenanteil des  $\alpha$ -MnAs zeigen und die Vermutung einer durch Einschnürung der ferromagnetischen Streifen bedingten Form-Anisotropie bestätigen.

# Literaturverzeichnis

- [1] G. A. Prinz, *Physics Today* **48**, 58 (1995).
- [2] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, and E. Weibel, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 57 (1982).
- [3] G. Binnig, C. F. Quate, and C. Gerber, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 930 (1986).
- [4] D. Pohl, in *Near Field Optics*, edited by D. W. Pohl and D. Courjon (Kluwer, Dordrecht, 1993), p. 2.
- [5] R. Hey, I. Gorbunova, M. Ramsteiner, M. Wassermeier, L. Däweritz, and K. H. Ploog, *J. Cryst. Growth* **175/176**, 1167 (1997).
- [6] R. Nötzel, J. Menninger, M. Ramsteiner, A. Ruiz, H.-P. Schönherr, and K. H. Ploog, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 1132 (1996).
- [7] W. Q. Ma, R. Nötzel, M. Ramsteiner, U. Jahn, H.-P. Schönherr, H. Kostial, and K. H. Ploog, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1836 (1999).
- [8] W. Q. Ma, *Self-organized quantum wires on patterned GaAs(311)A and on unpatterned GaAs(100)* (Dissertation, Humboldt-Universität zu Berlin, 2001).
- [9] E. H. Synge, *Phil. Mag.* **6**, 356 (1928).
- [10] E. H. Synge, *Phil. Mag.* **13**, 297 (1932).
- [11] H. A. Bethe, *Phys. Rev.* **66**, 163 (1944).
- [12] E. A. Ash and G. Nichols, *Nature* **237**, 510 (1972).
- [13] D. W. Pohl, W. Denk, and M. Lanz, *Appl. Phys. Lett.* **44**, 651 (1984).
- [14] E. Betzig, A. Lewis, A. Harootunian, M. Isaacson, and E. Kratschmer, *Biophys. J.* **49**, 269 (1986).
- [15] M. A. Paesler and P. J. Moyer, *Near-field Optics* (Wiley, New York, 1996).
- [16] L. Rayleigh, *Phil. Mag.* **43**, 259 (1897).
- [17] A. Sommerfeld, in *Vorlesungen über theoretische Physik (Bd. 4, Optik)* (Harri Deutsch, Thun, 1989), p. 239.
- [18] C. J. Bouwkamp, *Philips Res. Rep.* **5**, 321 (1950).

- [19] L. Novotny, D. W. Pohl, and P. Regli, *Ultramicroscopy* **57**, 180 (1995).
- [20] R. D. Grober, T. Rutherford, and T. D. Harris, *Appl. Opt.* **35**, 3488 (1996).
- [21] C. Mihalcea, W. Scholz, S. Werner, S. Münster, E. Oesterschulze, and R. Kas-sing, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 3531 (1996).
- [22] U. Hartmann, *Ann. Rev. Mater. Sci.* **29**, 57 (1999).
- [23] E. Betzig, J. K. Trautman, T. D. Harris, J. S. Weiner, and R. L. Kostelak, *Science* **251**, 1468 (1991).
- [24] T. E. Everhart and P. H. Hoff, *J. Appl. Phys.* **42**, 5837 (1971).
- [25] D. L. Abraham, A. Veider, C. Schönenberger, H. P. Meier, D. J. Arent, and S. F. Alvarado, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 1564 (1990).
- [26] L. Montelius, F. Owman, M.-E. Pistol, and L. Samuelson, in *Microscopy of Semiconducting Materials*, edited by A. G. Cullis and N. J. Long (IOPCS, Bristol, 1991), Vol. 117, p. 719.
- [27] Omicron, U.S. Pat. No. 5237238.
- [28] K. Karrai and R. D. Grober, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1842 (1995).
- [29] M. J. Gregor, P. G. Blome, J. Schöfer, and R. G. Ulbrich, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 307 (1996).
- [30] J. W. P. Hsu, M. Lee, and B. S. Deaver, *Rev. Sci. Instr.* **66**, 3177 (1995).
- [31] M. Garcia-Parajo, E. Cambril, and Y. Chen, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 1498 (1994).
- [32] E. Betzig, P. C. Finn, and J. S. Weiner, *Appl. Phys. Lett.* **60**, 2484 (1992).
- [33] R. Toledo-Crow, P. C. Yang, Y. Chen, and M. Vaez-Iravani, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 2957 (1992).
- [34] P. J. Moyer and M. A. Paesler, in *Scanning Probe Microscopies II*, edited by C. C. Williams (SPIE, Bellingham, 1993), Vol. 1855, p. 58.
- [35] G. A. Valaskovic, M. Holton, and G. H. Morrison, *Appl. Opt.* **34**, 1215 (1995).
- [36] D. R. Turner, U.S. Patent No. 4,469,554 (1984).
- [37] R. Stöckle, C. Fokas, V. Deckert, R. Zenobi, B. Sick, B. Hecht, and U. P. Wild, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 160 (1998).
- [38] J. A. Veerman, A. M. Otter, L. Kuipers, and N. F. van Hulst, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 3115 (1998).
- [39] S. Pilevar, K. Edinger, W. Atia, I. Smolyaninov, and C. Davis, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 3133 (1998).

- [40] K.-B. Song, J.-E. Bae, and K. Cho, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2260 (1998).
- [41] G. von Freymann, D. Lürßen, C. Rabenstein, M. Mikolaiczky, H. Richter, H. Kalt, T. Schimmel, and M. Wegener, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 203 (1999).
- [42] G. von Freymann, T. Schimmel, and M. Wegener, *Appl. Phys. A* **66**, 939 (1997).
- [43] G. von Freymann, T. Schimmel, M. Wegener, B. Hanewinkel, A. Knorr, and S. W. Koch, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 1170 (1998).
- [44] G. von Freymann, M. Wegener, and T. Schimmel, *Surf. Interface Anal.* **27**, 499 (1999).
- [45] R. Müller and C. Lienau, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3367 (2000).
- [46] V. Sandoghdar, S. Wegscheider, G. Krausch, and J. Mlynek, *J. Appl. Phys.* **81**, 2499 (1996).
- [47] F. F. Froehlich and T. D. Milster, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 2254 (1994).
- [48] R. D. Grober, J. Acimovic, J. Schuck, D. Hessman, P. J. Kindlermann, K. Karrai, I. Tiemann, and S. Manus, *Rev. Sci. Instr.* **71**, 2776 (2000).
- [49] A. Cricenti, R. Generosi, C. Barchesi, M. Luce, and M. Rinaldi, *Rev. Sci. Instr.* **69**, 3240 (1998).
- [50] O. Brandt, R. Muralidharan, P. Waltereit, A. Thamm, and K. H. Ploog, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 4019 (1999).
- [51] A. Thamm, O. Brandt, Y. Takemura, A. Trampert, and K. H. Ploog, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 944 (1999).
- [52] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Saunders College Publishing, Fort Worth, 1976).
- [53] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics* (Wiley, New York, 1996).
- [54] R. Dingle, W. Wiegmann, and C. H. Henry, *Phys. Rev. Lett.* **33**, 827 (1974).
- [55] E. Kapon, D. M. Hwang, and R. Bhat, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 430 (1989).
- [56] I. N. Stranski and L. Krastanov, *Satzungsber. Akad. Wiss. Wien, Math. Naturwiss. K1 Iib* **146**, 797 (1938).
- [57] J. I. Frenkel, *Phys. Rev.* **37**, 17 (1931).
- [58] R. Peierls, *Ann. Phys.* **13**, 905 (1932).
- [59] J. I. Frenkel, *Phys. Ztschr. Sowjetunion* **9**, 158 (1936).
- [60] J. H. Davies, *The Physics of Low-Dimensional Semiconductors* (Cambridge University Press, Cambridge, 1998), p. 402.

- [61] R. L. Greene, K. K. Bajaj, and D. E. Phelps, *Phys. Rev. B* **29**, 1807 (1983).
- [62] H. B. Bebb and E. W. Williams, *Semiconductors and Semimetals* (Academic Press, New York, 1972), Vol. 8, p. 201.
- [63] S. A. Lyon, *J. Lumin.* **35**, 121 (1986).
- [64] L. Pavesi and M. Guzzi, *J. Appl. Phys.* **75**, 4779 (1994).
- [65] F. Williams, in *Luminescence of inorganic solids*, edited by P. Goldberg (Akademie Press, New York, 1966).
- [66] R. L. Schwoebel, *J. Appl. Phys.* **37**, 3682 (1966).
- [67] U. Jahn, K. Fujiwara, R. Hey, H. T. Grahn, and J. Menninger, *J. Cryst. Growth* **150**, 43 (1995).
- [68] D. Bimberg, D. Mars, J. N. Miller, R. Bauer, and D. Oertel, *J. Vac. Sci. Technol. B* **4**, 1014 (1986).
- [69] J. Singh, K. K. Bajaj, and S. Chaudhuri, *Appl. Phys. Lett.* **44**, 805 (1984).
- [70] J. Christen and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* **42**, 7213 (1990).
- [71] L. Schrottke, Paul-Drude-Institut Berlin.
- [72] H. F. Hess, E. Betzig, T. D. Harris, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, *Science* **264**, 1740 (1994).
- [73] H. Hillmer, S. Hansmann, and A. Forchel, *Phys. Rev. B* **45**, 8782 (1990).
- [74] P. V. Santos, R. Nötzel, and K. H. Ploog, *J. Appl. Phys.* **85**, 8228 (1999).
- [75] R. Nötzel, M. Ramsteiner, J. Menninger, A. Trampert, H.-P. Schönherr, L. Däweritz, and K. H. Ploog, *J. Appl. Phys.* **80**, 4108 (1996).
- [76] A. Richter, G. Behme, M. Süptitz, C. Lienau, T. Elsässer, M. Ramsteiner, R. Nötzel, and K. H. Ploog, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2145 (1997).
- [77] R. Nötzel, M. Ramsteiner, J. Menninger, A. Trampert, H.-P. Schönherr, L. Däweritz, and K. H. Ploog, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, L297 (1996).
- [78] H. Weman, E. Martinet, A. Rudra, and E. Kapon, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2959 (1998).
- [79] H. Schneider, E. C. Larkins, J. D. Ralston, K. Schwarz, F. Fuchs, and P. Koidl, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 782 (1993).
- [80] U. Jahn, Paul-Drude-Institut Berlin.
- [81] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 2173 (1984).

- [82] Programm *qwell*.
- [83] U. Jahn, R. Nötzel, R. Hey, H. T. Grahn, and K. H. Ploog, Jpn. J. Appl. Phys. **39**, 4512 (2000).
- [84] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, and H. Sower, Phys. Rev. Lett. **57**, 2442 (1986).
- [85] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, Phys. Rev. B **39**, 4828 (1989).
- [86] M. Kaku, *Zukunftsvisionen* (Knaur, München, 2000).
- [87] W. Tittel, J. Brendel, N. Gisin, G. Ribordy, and H. Zbinden, Phys. Blätter **55**, 25 (1999).
- [88] *Spin Electronics*, edited by M. Ziese and M. J. Thornton (Springer-Verlag, Berlin, 2001).
- [89] H. J. Zhu, M. Ramsteiner, H. Kostial, M. Wassermeier, H. P. Schönherr, and K. H. Ploog, Phys. Rev. Lett. **87**, 016601 (2001).
- [90] H. Okamoto, Bulletin of Alloy Phase Diagrams **10**, 549 (1989).
- [91] H. Okamoto, in *Binary Alloy Phase Diagrams*, edited by T. B. Massalski, H. Okamoto, P. R. Subramanian, and L. Kaczkazak (American Society of Metals, Metals Park, 1990), Vol. 1.
- [92] M. Tanaka, J. P. Harbison, T. Sands, T. L. Cheeks, V. G. Keramidas, and G. M. Rothberg, J. Vac. Sci. Technol. **12**, 1091 (1994).
- [93] M. Tanaka, J. P. Harbison, M. C. Park, Y. S. Park, T. Shin, and G. M. Rothberg, J. Appl. Phys. **76**, 6278 (1994).
- [94] M. Tanaka, J. P. Harbison, M. C. Park, Y. S. Park, T. Shin, and G. M. Rothberg, Appl. Phys. Lett. **65**, 1964 (1994).
- [95] M. Tanaka, Physica E **2**, 372 (1998).
- [96] R. H. Wilson and J. S. Kasper, Acta Cryst. **17**, 95 (1964).
- [97] C. P. Bean and D. S. Rodbell, Phys. Rev. **126**, 104 (1962).
- [98] F. Schippan, A. Trampert, L. Däweritz, and K. H. Ploog, J. Vac. Sci. Technol. **17**, 1716 (1999).
- [99] V. M. Kaganer, B. Jenichen, F. Schippan, W. Braun, L. Däweritz, and K. H. Ploog, Phys. Rev. Lett. **85**, 341 (2000).
- [100] L. Däweritz, F. Schippan, M. Kästner, B. Jenichen, V. M. Kaganer, and K. H. Ploog, in *Proceedings of the Twenty-Eighth International Symposium on Compound Semiconductors*, edited by Y. Arakawa, Y. Hirayama, K. Kishino, and H. Yamaguchi (IOP, Bristol, 2002), Vol. 170, p. 269.



- [101] A. Trampert, F. Schippan, L. Däweritz, and K. H. Ploog, in *Proceedings of the Eleventh International Conference on Microscopy of Semiconducting Materials* (IOP, Bristol, 1999), Vol. 164, p. 305.
- [102] V. M. Kaganer, B. Jenichen, F. Schippan, W. Braun, L. Däweritz, and K. H. Ploog, *Phys. Rev. B*, submitted .
- [103] N. Sridhar, J. M. Rickman, and D. J. Srolovitz, *Acta Mater.* **44**, 4085 (1996).
- [104] N. Sridhar, J. M. Rickman, and D. J. Srolovitz, *Acta Mater.* **44**, 4097 (1996).
- [105] priv. Mitteilung L. Däweritz, Paul-Drude-Institut Berlin.
- [106] L. D. Landau and E. Lifshitz, *Phys. Z. Sowjetunion* **8**, 153 (1935).
- [107] L. Néel, *J. de Phys.* **8**, 265 (1944).
- [108] F. Schippan, *Materialintegration von Halbleitern mit magnetischen Werkstoffen* (Dissertation, Humboldt-Universität zu Berlin, 2001).
- [109] F. Schippan, G. Behme, L. Däweritz, and K. H. Ploog, *J. Appl. Phys.* **88**, 2766 (2000).

**Aus dieser Arbeit wurden folgende Beiträge veröffentlicht bzw. zur Veröffentlichung eingereicht:**

*Direct evidence for periodic elastic domains of coexisting phases in MnAs films on GaAs*  
T. Plake, M. Ramsteiner, V. M. Kaganer, B. Jenichen, M. Kästner, L. Däweritz, and K. H. Ploog, Appl. Phys. Lett. **80** (14), 2523 (2002).

*Monolayer topography resolution achieved in a scanning near-field optical microscope*  
T. Plake, M. Ramsteiner, and H. T. Grahn, submitted to Appl. Phys. Lett.

**Weitere Veröffentlichungen:**

*Highly resolved photoemission on high  $T_C$ 's of the BiSrCaCuO-family*  
C. Janowitz, R. Müller, T. Plake, A. Müller, A. Krapf, H. Dwelk, and R. Manzke, Physica B **259-261**, 1134 (1999).

*New high-resolution photoemission station for synchrotron radiation at BESSY*  
C. Janowitz, R. Müller, T. Plake, Th. Böker, and R. Manzke, J. Electr. Spectr. **105**, 43 (1999).

# Abkürzungsverzeichnis

SNOM	<i>scanning near-field optical microscope</i>
AFM	<i>atomic force microscope</i>
MFM	<i>magnetic force microscope</i>
SPM	<i>scanning probe microscopy</i>
SFM	<i>scanning force microscopy</i>
STM	<i>scanning tunneling microscope</i>
PTM	<i>photon tunneling microscope</i>
PL	<i>photoluminescence</i>
PLE	<i>photoluminescence excitation</i>
CL	<i>cathodoluminescence</i>
EL	<i>electroluminescence</i>
STL	<i>scanning tunneling luminescence</i>
CCD	<i>charge coupled device</i>
QW	<i>quantum well</i>
QWR	<i>quantum wire</i>
QD	<i>quantum dot</i>
SPSL	<i>short period superlattice</i>
BEP	<i>beam equivalent pressure</i>
SF	<i>step flow</i>
2DN	<i>two-dimensional nucleation</i>
LED	<i>light emitting diode</i>
EBIC	<i>electron beam induced current</i>
QCSE	<i>quantum confined Stark effect</i>
CHM	<i>constant height mode</i>
CGM	<i>constant gap mode</i>
FWHM	<i>full width half maximum</i>
SQUID	<i>superconducting quantum interference device</i>
MBE	<i>molecular beam epitaxy</i>
SEM	Sekundärelektronenmikroskop
TEM	Transmissionselektronenmikroskop
FEM	Finite-Elemente-Methode
ML	Monolage
HL	Halbleiter

# Danksagung

Die vorliegende Arbeit ist der Abschluss meiner drei Jahre und zwei Monate währenden Doktorandenzeit. Der Weg zum Ziel war durchaus steinig. Ohne die Hilfe einiger Mitmenschen und Kollegen wär so manches kleine oder große Problem schwer zu lösen gewesen. In diesem Sinne gilt mein herzlicher Dank...

...Herrn Prof. Dr. K. H. Ploog für die Aufnahme ans Paul-Drude-Institut und die Betreuung der Promotion.

...Herrn Prof. Dr. H. T. Grahn für die freundliche Aufnahme in die Abteilung «Halbleiterspektroskopie» sowie für die Unterstützung in der schwierigen Halbzeit-Phase.

...Herrn Dr. Manfred Ramsteiner, der mich in der SNOM-Ecke seines Labors schalten und walten ließ, sowie für die vielen Hilfen und Ratschläge während unserer Zusammenarbeit (Ausgenommen die Zeiten, in denen ich mit Angina im Bett lag).

...Herrn Dr. L. Däweritz für die fruchtbare und angenehme Zusammenarbeit, vor allem natürlich in puncto MnAs/GaAs.

...Herrn Dr. Thorsten Hesjedal für die Zusammenarbeit bei den MFM-Messungen sowie den vielen kleinen Kniffen, die ein Doktorand so braucht, um zu bestehen.

...Herrn Dr. Oliver Brandt für die vielen Hilfen, beispielsweise zu den Themen  $\text{\LaTeX}$ , Wachstumsmodi und Photolumineszenz.

...allen Mitarbeitern der siebten Etage, insbesondere Herrn Dr. R. Hey, Herrn Dr. V. Kaganer, Herrn Dr. Martin Kästner, Herrn Y. J. Sun (alias Sunny), und natürlich Frau I. Schuster für all die Dinge, die mit Graphik und Photographie zu tun hatten.

...allen Mitarbeitern der sechsten Etage, darunter Herrn Dr. Lutz Schrottke für die FEM-Berechnungen u.v.m., und Herrn Dr. Uwe Jahn für die nahrhaften Gespräche, beispielsweise über EBIC und Quantendraht-LED-Strukturen oder zu CL-Messungen an Quantenfilmen.

...allen Mitarbeitern der dritten Etage, hier besonders Herrn Dr. H. Kostial und Frau E. Wiebicke für die vielen diversen Probenätzungen, Mesaspaltungen u.v.m., sowie Herrn Gerd Paris, der mir technischen Beistand gab, und Herrn Joe Schönberg für die vielen Antworten auf die ach so überflüssigen Fragen, die das Thema «Computer» betrafen.

...meinen Eltern für ihre Unterstützung, speziell meiner Mutsch für das gewissenhafte Korrekturlesen und meinem Paps für die typographische Hilfestellung bei der Anfertigung des Manuskripts, und vor allem

Lena

# Lebenslauf

Name: Tilo Plake  
Geburtsdatum: 31. Januar 1972  
Geburtsort: Berlin

## Bildungsweg

seit 01.05. 1999	Promotionsstudent am Berliner Paul-Drude-Institut für Festkörperelektronik in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. H. T. Grahn. Betreuung: Prof. Dr. K. H. Ploog
07.01. 1999	Auszeichnung mit dem Förderpreis für Physik der WE-Heraeus-Stiftung
28.09. 1998	Abschlußkolloquium und Erlangung des akademischen Grades eines Diplom-Physikers
1997 - 1998	Diplomarbeit über Photoemissionsexperimente an Hochtemperatursupraleitern an der Humboldt-Universität zu Berlin. Betreuer: Prof. Dr. R. Manzke
1995 - 1996	Studienaufenthalt in Großbritannien an der University of Edinburgh
1994 - 1998	Hauptstudium im Studienfach Physik (Diplom) an der Humboldt-Universität zu Berlin
05.10. 1994	Vordiplom in Physik
1992 - 1994	Immatrikulation an der Humboldt-Universität zu Berlin; Grundstudium im Studienfach Physik (Diplom)
1990 - 1992	Besuch des Abendgymnasiums Berlin-Friedrichshain und Erlangung der allgemeinen Hochschulreife (Abitur)
1988 - 1990	Berufsausbildung zum Facharbeiter für Werkzeugmaschinen am Zentrum für Wissenschaftlichen Gerätebau Berlin-Adlershof



1978 - 1988      Besuch der 5. Polytechnischen Oberschule Berlin-Friedrichshain

## **Tätigkeiten**

seit 01.05.1999      angestellt am Paul-Drude-Institut Berlin; Aufgaben: optische Nahfeldspektroskopie an Halbleiterstrukturen

1998 - 1999      wissenschaftlicher Berater bei der Berliner Festspiele GmbH zur Vorbereitung der Ausstellung «Sieben Hügel — Bilder und Zeichen des 21. Jahrhunderts»

1996 - 1998      beschäftigt als wissenschaftliche Hilfskraft in der Arbeitsgruppe «Elektronische Eigenschaften und Supraleitung» am Institut für Physik der HUB

1992      Ausmusterung vom Wehrdienst

1990 - 1992      angestellt als Facharbeiter für Werkzeugmaschinen (Feinmechanik) am Zentrum für Wissenschaftlichen Gerätebau Berlin-Adlershof

## **Aktivitäten**

1997 - 1998      Finanzverantwortlicher der Fachschaft Physik der HUB

seit 1997      Mitwirkung in verschiedenen Laienorchestern (Violine)

# Erklärung

Hiermit erkläre ich, die vorliegende Arbeit selbständig und ohne unerlaubte Hilfe angefertigt zu haben.

Ich habe mich anderwärts nicht um einen Doktorgrad beworben und besitze einen entsprechenden Doktorgrad nicht.

Ich erkläre die Kenntnisnahme der dem Verfahren zugrunde liegenden Promotionsordnung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I der Humboldt-Universität zu Berlin.

Tilo Plake

25. Juni 2002